



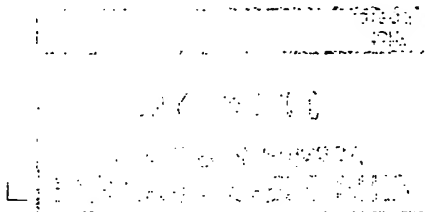
P.B. 5818 - Patentan 2
2280 HV Rijswijk (ZH)
(070) 340 2040
TX 31651 epo nl
FAX (070) 340 3016

Europäisches
Patentamt
Zweigstelle in
Den Haag
Recherchen-
abteilung

Europäan
Patent Office
Branch at
The Hague
Search
Division

Office européen
des brevets
Département à
La Haye
Division de la
recherche

VOSSIUS & PARTNER
Siebertstrasse 4
81675 München
ALLEMAGNE



Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprietor/Titulaire Itoh Optical Industrial Co., Ltd.	
Zeichen/Ret./Réf F 3227 EP	Anmeldung Nr./Application No./Demande n°/Patent Nr./Patent No./Brevet n° 00927805.2-2115/JP0003180
Datum/Date 28.03.03	

COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits the partial European search report under Rule 46(1) EPC relating to the above-mentioned European patent application.

Copies of the documents cited in the search report are enclosed.

The applicant's attention is drawn to the following:

The search Division informs the applicant that if the European search report is also to cover inventions other than the invention first mentioned in the claims, a further search fee must be paid for each of these inventions, within ONE MONTH after notification of this communication. If the application has been filed up to 30 June 1999, the search fee in force before 01 July 1999 (EUR 869,-) or the equivalent applicable on the date of payment is payable. This applies also to the search fees requested under Rule 46(1) EPC. See also OJ EPO 06/1999, 405.

☐ The abstract was modified by the Search Division and the definitive text is attached to the present communication.

☒ Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well.

Note to users of the automatic debiting procedure:

Unless the EPO receives prior instructions to the contrary, the search fee(s) will be debited on the last day of the period for payment. For further details see the Arrangements for the automatic debiting procedure, Supplement to OJ EPO 02/1999.

REGISTERED LETTER



DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		CATEGORY OF CITED DOCUMENTS X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document & : member of the same patent family, corresponding document	
Category Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages Relevant to claim		Place of search MUNICH Date of completion of the search 19 March 2003 Examiner Kottitz, R	
CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.7) C09D167/00 C09D5/00 C09D183/06 C08J7/04 C08G18/32 C08G75/02 G02B1/10 G02B1/04 D06P5/00 C09D167/02		TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.7) C09D	
LACK OF UNITY OF INVENTION The Search Division considers that the present European patent application does not comply with the requirements of unity of invention and relates to several inventions or groups of inventions, namely: see sheet B The present partial European search report relates to the invention first mentioned in the claims.		Category A EP 0 791 620 A (ATOHEM ELF SA) 27 August 1997 (1997-08-27) * page 3, line 20 - page 3, line 39; claims 1-4; example 14 * * page 2, line 30 - page 2, line 47 * abstract US 5 929 165 A (ITO TOSHIO ET AL) 27 July 1999 (1999-07-27) * column 26, line 13 - column 26, line 22; tables 14-17 * * claim 8 * US 5 383 166 A (GALLAY JACQUES-ANDRE) 17 January 1995 (1995-01-17) * column 4, line 37 - column 5, line 3; claim 3 *	



ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.

EP 00 92 7805

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

19-03-2003

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
---	---------------------	----------------------------	---------------------

EP 0791620	A	27-08-1997	JP 9227696 A 21-09-1997 CA 2198025 A1 21-08-1997 CN 1168900 A 31-12-1997 EP 0791620 A2 27-08-1997 KR 203842 B1 15-06-1999 US 5939183 A 17-08-1999
------------	---	------------	--

US 5929165	A	27-07-1999	JP 3102842 B2 23-10-2000 JP 8225713 A 03-09-1996 JP 3102844 B2 23-10-2000 JP 9151295 A 10-06-1997 JP 3102847 B2 23-10-2000 JP 9278979 A 28-10-1997 DE 69606489 D1 09-03-2000 DE 69606489 T2 21-09-2000 DE 0770645 A2 02-05-1997 US 6048933 A 11-04-2000
------------	---	------------	--

US 5383166	A	17-01-1995	CH 682968 A3 31-12-1993 DE 69301104 D1 08-02-1996 DE 69301104 T2 05-09-1996 EP 0556155 A1 18-08-1993
------------	---	------------	---



(54) Title: OPTICAL ELEMENT

(54) 発明の名称: 光学要素

(57) Abstract: An optical element comprising an organic glass base and a hard coat layer formed over the surface of the base through a primer layer. The primer layer has been formed from a composition comprising a primer-forming polymer consisting exclusively or mainly of an ester type TPE. The hard coat layer has been formed from a composition comprising a matrix-forming ingredient and a siloxane-based metal oxides composite of titanium-based metal oxides as an optical interference controller. The finely particulate composite of titanium-based metal oxides comprises TiO_2 as the main component, SiO_2 as the primary, minor component, and ZrO_2 and K_2O as trace minor components. The optical element has various properties comparable to those of conventional optical parts and can inhibit light interference even when the base has a high refractive index. It further has excellent coating film stability.

[続葉有]

- (51) 国際特許分類: C09D 167/00, 5/00, 183 06, C08J 7/04, C08G 18/32, 75/02, G02B 1/10, 1 04, D06P 5/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/03180
- (22) 国際出願日: 2000 年 5 月 18 日 (18.05.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 伊藤光
学工業株式会社 (ITO OPTICAL INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒413-0041 愛知県蒲郡市宮成町3番19号 Aichi (JP)
- (72) 発明者: および
RAI, Sachio [JP/JP]; 〒414-0406 愛知県幡豆郡一色町大字対米字九郎左2-2 Aichi (JP), 内田直樹 (UCHIDA, Naoki) [JP/JP]; 〒414-0324 愛知県西尾市寺津町白山
- (74) 代理人: 飯田昭夫, 外 (IIDA, Akio et al.); 〒460-0008 愛知県名古屋市中区栄二丁目11番18号 Aichi (JP)
- (81) 指定国 (国内): AU, CA, JP, US
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)
- 添付公開書類:
国際調査報告書
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 村井幸雄 (MURAI, Sachio) [JP/JP]; 〒414-0406 愛知県幡豆郡一色町大字対米字九郎左2-2 Aichi (JP), 内田直樹 (UCHIDA, Naoki) [JP/JP]; 〒414-0324 愛知県西尾市寺津町白山
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTカセットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(19) 世界的な所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日

2001 年 11 月 22 日 (22.11.2001)

PCT

WO 01/88048 A1

(10) 国際公開番号



(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(57) 要約:

有機ガラス基材の表面に、フライヤー層を介してハードコート層が形成されてなる光学要素。フライヤー層を形成するフライヤー組成物が、フライヤー層形成ポリマーの全部又は主体をエステル系TPETとするものである。また、ハードコート層を形成するハードコート組成物が、モノエポキシ有機基含有トリアルコキシランを主体とするアルコキシランの加水分解物をアトリック形成成分として、チタニア系酸化金属複合微粒子を光学的干渉制御剤とし、記チタニア系酸化金属複合微粒子が、TiO₂を主体としSiO₂を主副成分とし、更に、ZrO₂及びK₂Oを微量副成分とするものである。本発明の光学要素は、従来の光学部品と同等の諸特性を有するとともに、高屈折率基材であっても光干渉を抑制可能で、塗膜部分の安定性にも優れたものである。

明 細 書

光学要素

技術分野

5 本発明は、光学要素に関する。より詳しくは、光学要素表面におけるハードコート組成物、フライマー組成物、反射防止膜等の表面加工技術、及び染色方法に関する。特に高い屈折率を有する有機ガラス基材の光学部品（光学要素）に好適なものである。

ここで光学要素とは、眼鏡用レンズ、カメラ・顕微鏡・望遠鏡・双眼鏡用レンズ、反射鏡、プリズム等の本来の光学要素に限られず、10 フォトリター、照明器具用カバー等も含む概念である。

以下の説明は眼鏡用レンズ（光学レンズ）を主として例に採り説明するがこれに限られるものではない。

背景技術

15 近年、光学レンズ材料として、無機ガラスに比して軽量かつ耐衝撃性に優れ、可染性で加工も容易な有機ガラスが普及してきている。その内でも、レンズ厚みを薄くすることが可能な高屈折率有機ガラス（屈折率1.60前後）が多用されつつある。しかし、一般的に有機ガラスは無機ガラスと比較して耐磨耗性（耐擦傷性）20 が低く、傷がつきやすい。そこで、有機ガラス基材（以下、単に「基材」と称することがある。）の表面にハードコート（シリコン系硬化塗膜）を施すことが一般的に行われている。更に眼鏡用レンズの場合、美観上等の理由から、ハードコート上に、無機物質の蒸着等の乾式メッキによる無機反射防止膜を形成させることが多い。

しかし、上記のように有機ガラス基材上に、ハードコートと無機反射防止膜の双方を設けたレンズは、耐衝撃性に劣るという不具合があった。そこで、耐衝撃性を向上させるために、基材とハードコートの間にポリウレタン系塗料（主としてウレタン系熱可塑性エラストマー（以下「TPU」という）を塗膜形成要素とする。）からなるプライマー層を介在させる技術的思想が種々提案されている。

そして、高屈折率の基材に、上記ハードコート層、及びプライマー層を積層させる場合、レンズの光干渉を防ぐため、各層においても基材と同等の屈折率を確保する必要がある。

10 本発明者等は、基材が比較的高屈折率であっても、光干渉を発生させないプライマー組成物（特開平6-82694号参照）や、高屈折率を有するハードコート組成物（特許第2577670号参照）を先に提案し一部実用化している。

15 しかし、さらに近年の動向としては、フッ素性がより重視され、よりレンズ端面のコバ厚を薄くしなければならないニーズが高まるにつれ、光学業界でさらに高い屈折率を有する超高屈折率有機ガラスレンズ（屈折率1.70）が市場に出回るようになった。

20 そして、上記特許第2577670号におけるハードコート組成物を、上記超高屈折率レンズに塗布した場合、光干渉を抑えることが困難であることが分かった。

また、レンズ長期使用経過後には、ハードコート層が紫外線によって黒化現象を起し美観を損ねることが分かった。この黒化現象は、ハードコート成分として用いた酸化鉄／酸化チタン複合酸化微粒子中の酸化鉄に基づくと推定される。

25 さらに、上記特開平6-82694号におけるプライマー組成物は、基材の耐熱性を低下させること、また層内が不均一性になりや

すく、そのため光の乱反射による量りが認められること、が分かっ

た。

他方、上述の高屈折率材料は、一般的に低屈折率材料と比較して難染性である。このため、分散染料等を使用した水系染浴（水溶液）に基材を浸漬して行なう浸漬染色法では、下記に挙げたような問題点が顕著に現れ易かった。

浸漬染色法は、均一かつ安定した色調の染色を基材に対して行な

うことが困難である。染色性（染色速度及び染色平衡）が、染料水

系分散液の各成分濃度（分散染料、界面活性剤、染色促進剤等の）

及び染色温度のバラツキ、さらには、有機ガラス基材の種類の影響

を受け易いためである。また、高濃度染色（染色）が必要な場合、

染色に長時間を要する。また、低温での染色であり染色力が十分に

ないことから後工程での色落ちが大きく、最終仕上がりで望みの色

調に仕上げることが困難である。

上記浸漬染色法の問題点を解決するために、例えば、気相中に染

料を昇華させガラス表面に染色層を形成した後、染料を加熱転写（

移染）する方法（特開昭56-159376号等）や、染色された

転写フィルムを有機ガラス基材表面に貼り付けて加熱転写する方法

（特開2000-17586号等）が提案されている。

しかし、前者の方法では染料により昇華温度が違いため、希望す

る色調、着色濃度を基材に得ることが困難であり、後者の方法では

、転写フィルムを曲面に対しきれいに貼り付けることが難しく、

着色むらの無い均一な着色を基材に得ることが困難である。

本発明の第一の目的は、従来のフライマー組成物と同等の諸特性

（耐衝撃性、耐擦傷性等）を付与できるとともに、基材の耐熱性を

低下させることなく屈折率を調整可能で、かつ光の乱反射による

曇りの少ないフライヤー組成物及びそれを利用した光学要素を提供することにある。

本発明の第二の目的は、超高屈折率基材に対しても、光干渉を抑えることができ、かつ、紫外線に対する黒化現象を発生せず光学部品を長期使用した場合も美観を損なわない耐光性の良好なハードコート組成物及びそれを利用した光学要素を提供することにある。

本発明の第三の目的は、上記ハードコートを有する光学要素において、ハードコート層との密着性、耐擦傷性、及び耐熱性が良好であり、広い波長範囲で優れた反射防止効果を有する反射防止膜、そして、眼鏡用レンズに一般的に求められている緑色の干渉色を良好に出すことができる反射防止膜を有する有機ガラス光学要素を提供することにある。

本発明の第四の目的は、安定かつ良好にさらには所要色調の染色が可能な有機ガラス染色用組成物及び有機ガラス染色方法を提供することにある。

発明の開示

(1) 第一発明は、下記構成のフライヤー組成物及び該フライヤー組成物からなるフライヤー要素により上記第一の目的を達成する。

20 本発明のフライヤー組成物は、有機ガラスとシリコン系硬化塗膜との間にフライヤー層を形成するためのものであって、フライヤー層形成ポリマーの全部又は主体がポリエスチル系熱可塑性エスチマー（エスチル系 TPE）であることを特徴とする。

上記フライヤー組成物は、金属酸化物微粒子を光学的干渉制御剤（屈折率調整剤）として含有するものであることが望ましい。

上記エスチル系 TPE は、ハードセグメントとソフトセグメント

とのモル比率が、前者／後者＝30／70～90／10であり、且つ、該エスチル系TPEが、表面硬度（シヨアD）：35～75、曲げ弾性率：40～800MPaの特性を示すものであることが望ましい。

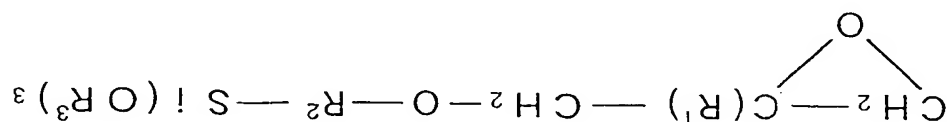
5 (2) 第二発明は、下記構成のハートコート組成物及び該ハートコート組成物からなるハート層を有する光学要素により、上記第二の目的を達成する。

本発明のハートコート組成物は、モノエボキシ有機基含有トリアルコキシシランを主体とするアルコキシシランの加水分解物をマトリックス形成成分として、チタニア系酸化金属複合微粒子を光学的干渉制御剤（屈折率調製剤）とするものであり、チタニア系酸化金属複合微粒子が、TiO₂を主体としSiO₂を主副成分とし、更に、ZrO₂及びK₂Oを微量副成分とするものであることを特徴とする。

15 上記チタニア系酸化金属複合微粒子は、平均粒径を1～50nmとし、組成をSiO₂／TiO₂＝0.1900～0.2100、ZrO₂／TiO₂＝0.0015～0.023、K₂O／TiO₂＝0.0012～0.012の各重量比率を満足するものとし、含量を全アルコキシシラン100重量部に対して40～100重量部とすることが望ましい。

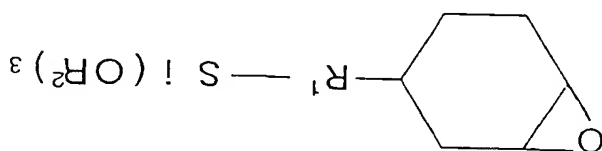
20 また、モノエボキシ有機基含有トリアルコキシシランが、

一般式①



25 (ただし、R¹はHまたはCH₃、R²は炭素数1～4のアルキル基、R³は炭素数1～4のアルキル基)で表される、又は、

一般式②



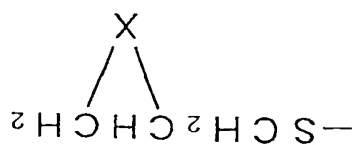
- 5 (ただし R^1 は炭素数1～4のアルキル基、 R^2 は炭素数1～4のアルキル基) で示される群から選択される1種又は2種以上からなるものを使用することが望ましい。
- さらに、前記モノエポキシ有機基含有トリアルコキシシラン以外のアルコキシシランとして、
- 10 一般式③ $Si(OR^1)_4$ (ただし、 R^1 は炭素数1～4のアルキル基)
- で示されるテトラアルコキシシランを使用し、該テトラアルコキシシランの含有量をアルコキシシラン全量中20wt%以下とすることが望ましい。

- 15 また、アトリックス形成成分の硬化剤として有機金属化合物を含
- 有し、該有機金属化合物が、エチレンジアミン四酢酸、ヘキサアルオロアセチルアセトン、トリフルオロアセチルアセトン、アセチルアセトン、アセト酢酸メチルから選ばれるキレート化剤が配位した
- 20 $Cr(III)$ 、 $Co(III)$ 、 $Fe(III)$ 、 $Zn(II)$ 、 $In(III)$ 、 III 、 $Zr(IV)$ 、 $Y(III)$ 、 Sn 、 V 、 $Al(III)$ 、 $Ti(III)$ のキレート化合物の群から選択される1種又は2種以上からなるものを使用することが望ましい。

- 25 第二発明のハードコート組成物を適用する有機ガラス基材は、屈折率1.66以上を示すものとすることが望ましい。
- 上記屈折率1.66以上を示す有機ガラスとしては、①ポリオ-

ル、ポリチオール、及び、メルカプト基を有するヒドロキシ化合物の群から選択される1種又は2種以上の活性水素化合物と、②ポリイソチオシアネート化合物又はイソシアネート基を有するイソチオシアネート化合物の群から選択される1種又は2種以上とを重合反応させて得られる有機ガラス、又は、

一般式④



10 (ただし、XはSまたはOを表し、このSの個数は三員環を構成するSとOの合計に対して平均で50%以上である。)

で示される構造を2個以上有し環状骨格を有するエピスルフィド化合物を重合反応させて得られる有機ガラスを用いることが望ましい。

15 (3) 第三発明は、上記記ハートコート層の上に、更に、下記構成の無機物質系の反射防止膜層を積層させることにより、上記第三の目的を達成する。

反射防止膜の構成が、設計中心波長 λ を450～550nmとし、前記ハートコート層側から、光学膜厚0.19～0.29 λ の中屈折率層、光学膜厚0.42～0.58 λ の高屈折率層、光学膜厚0.19～0.29 λ の低屈折率層の順に成膜させた多層構造を有するものであることを特徴とする。

さらに、中屈折率層と高屈折率層とがそれぞれ屈折率の異なる物質を2層以上用いた等価膜からなるものとすることが望ましい。

25 上記反射防止膜の成膜方法は、反射防止膜の成膜前に、ハートコート層表面をイオン照射でクリーニング処理することが望ましい。

そして、反射防止膜のうち、少なくとも高屈折率層の成膜をイオソビームアサスト法による蒸着で行うことが望ましい。

(4) 第四発明の有機ガラス染色用組成物及び有機ガラス染色方法は、前記第四の目的を達成するものである。

5 第四発明の有機ガラス染色用組成物は、染料を非水溶性染料、染料キャリア剤（のり剤）をアクリル系樹脂、染料溶解剤をSP値8～11の有機溶剤とすることを特徴とするものである。

そして、アクリル系樹脂と非水溶性染料の配合重量比は、前者／後者＝60／40～5／95とすることが望ましい。

10 上記染色方法は、上記染色用組成物を有機ガラス基材又はハードコート層を備えた有機ガラス基材（以下「被染基材」という。）上に付着させ、非水溶性染料を昇華させることにより、被染基材に移染を行うことを特徴とする。

15 図面の簡単な説明

第1図は、実験例における実施例4で作製したレンズの波長と反射率の関係を示すグラフ図である。第2図は、同比較例4において作製したレンズの波長と反射率の関係を示すグラフ図である。

20 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の各構成について、詳細に説明をする。以下の記載で配合単位は、特に断らない限り重量単位とする。

25 A. 本発明のガラス系組成物は、有機ガラスとシリコン系硬化塗膜との間にプライヤー層を形成するためのものであることを前提的要件とする。

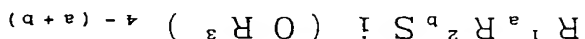
(1) 上記有機ガラスとしては、屈折率1.40～1.75のもの

なら特に限定されず、ポリメチルメタクリレート、脂肪族ポリアリ
ルカーボネート、芳香族ポリアリルカーボネート、ポリスルフォ
ン、ポリチオウレタン（チオウレタン樹脂）、ポリチオエポキシ
（チ
オエポキシ樹脂）等を挙げることができる。これらの内で、高屈折
率（屈折率 1.66 以上）のものを得易い芳香族アリルポリカーボ
ネート、ポリスルフォン、ポリチオウレタン、ポリチオエポキシが
望ましい。

(2) 上記シリコーン系硬化塗膜（ハードコート膜）は、シリコー
ン系のものであれば特に限定されない。

10 例えば、オルガノアルコキシシランの加水分解物に、触媒、金属
酸化物微粒子（複合微粒子を含む）を加え、希釈溶剤にて塗布可能
な粘度になるように調節する。さらに、このハードコート液には、
適宜界面活性剤、紫外線吸収剤等の添加も可能である。

15 ①上記オルガノアルコキシシランとしては、下記一般式で示され
るものが使用可能である。



(但し、 R^1 は炭素数 1～6 のアルキル基、ビニル基、エポキシ基
、メタクリルオキシ基、フェニル基であり、 R^2 は炭素数 1～3 の
アルキル基、アルキレン基、シクロアルキル基、ハロゲン化アルキ
ル基、アリール基、アリールアルキル基、アルキルアリール基、 R
 3 は炭素数 1～4 のアルキル基、アルキレン基、シクロアルキル基
、アルコキシアルキル基、アリールアルキル基である。また、 $a =$
0 または 1、 $b = 0$ 、1 または 2 である)。

25 具体的には、チトラマトキシシラン、メチルトリメトキシシラン
、ビニルトリメトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメ
トキシシラン、トリメチルクロシラン、グリシドキシメチルトリ

5 ②上記触媒としては、トリメリト酸、無水トリメリト酸、イタコン酸、ピロメリト酸、無水ピロメリト酸等の有機カルボン酸、メチルイミダゾール、ジシアジアミド等の窒素含有有機化合物、チタニアコキシド、ジルコニアコキシド等の金属アルコキシド、アセチルアセトニアリミニウム、アセチルアセトン鉄等の金属錯体、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム等のアルカリ金属有機カルボン酸塩を使用できる。

10 ③金属酸化物微粒子としては、平均粒径が5～50nmのコロイドシリカ、コロイドタルチタニア、コロイドアルジルコニア、コロイドタル酸化セリウム(IV)、コロイドタル酸化タンタル(V)、コロイドタル酸化スズ(IV)、コロイドタル酸化アノチモン(III)、コロイドタルアルミナ、コロイドタル酸化鉄(III)等を使用でき、これらは、単一使用の他に、2種以上を併用、または複合微粒子として使用することも可能である。

20 ④希釈溶剤としては、アルコール類、ケトン類、エステル類、エーテル類及びセロソル類等の極性溶剤を好適に使用できる。

25 ⑤コーティング方法としては、スピンコート法、ダイキャスト法等の公知の方法から選ばれる。硬化条件は、80～130℃×1～4hとする。

30 (3) 上記シリコン系硬化塗膜の上には、通常、反射防止膜を形成する。該反射防止膜の形成は、通常、金属、金属酸化物、金属フ

ッ化物等の無機微粒子を、真空蒸着、スパッタリング、イオンプラ
ーティング等の乾式メッキ法により行う。

反射防止膜を形成する無機物としては、シリカ、チタニア (IV)
、酸化タンタル (V)、酸化アンチモン (III)、ジルコニア、ア
ルミナ等の金属酸化物や、フッ化マグネシウム等の金属フッ化物を
好適に使用できる。

B. 本発明のプライマー組成物は、プライマー層形成ポリマーの
全部又は主体がエステル系 TPE (以下「TPE」という) であ
り、必要により、金属酸化物微粒子を光学的干渉制御剤として含有
10 することとを特徴とするものである。

(1) TPE としては、ポリエステル・ポリエーテル型及びポリ
エステル・ポリエステル型の双方を使用可能である。
上記 TPE は、ハードセグメントにポリエステル、ソフトセグ
メントにポリエーテルまたはポリエステルを使用したアルチプロッ
ク共重合体である。 15

そして、当該 TPE のハードセグメントとソフトセグメントと
の重量比率は、前者/後者 = 30/70 ~ 90/10、望ましくは
40/60 ~ 80/20 とする。ハードセグメントの割合が 30%
未満では硬さ、モジュラス、機械的強度及び耐熱性が低下し、90
20 % を越えるゴム弾性及び低溫特性が低下する。

そして、エステル系 TPE が、表面硬度 (ショア D) : 35 ~ 7
5、曲げ弾性率 : 40 ~ 800 MPa を示すものであることが望ま
しい。

以下に、TPE のハードセグメント構成成分とソフトセ
グメント構成成分の具体例を挙げる。 25

① ハードセグメント構成成分としてのポリエステル :

基本的には、ジカルボン酸類と低分子グリコールよりなる。

ジカルボン酸としては、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸、コハク酸、アジピン酸、アゼライン酸、テカメチレンジカルボン酸、オクタデカンジカルボン酸等の炭素数4～20の直鎖飽和脂肪族ジカルボン酸、ε-オキシカプロン酸等の脂肪族オキソカルボン酸（下記一般式参照）、ダイマー酸（二重結合を有する脂肪族モノカルボン酸を二量重合させた二塩基酸）等、及びこれらのエステル形成性誘導体が挙げられる。これらの中でもテレフタル酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸が使用に際して望ましい。

一般式 $R^1CO(CH_2)_nCOOH$

注) R^1 : アルキル基またはH、 n : 0～19。

低分子グリコールとしては、エチレングリコール、トリメチレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、1, 6-ヘキサジオール、ネオペンチルグリコール等の脂肪族グリコール、1, 6-シクロヘキサジメタノール等の脂肪族グリコール等、及びこれらのエステル形成性誘導体が挙げられる。これらの中でもエチレングリコール、1, 4-ブタンジオールが使用に際して望ましい。

②ソフトセクメント構成成分としてのポリエスナルジカルボン酸類と長鎖グリコールよりなり、ジカルボン酸類としては、前記のものが挙げられる。

長鎖グリコールとしては、ポリ(1, 2-アタジエングリコール)、ポリ(1, 4-アタジエングリコール)及びその水素添加物等が挙げられる。

また、ε-カプロラクトン(C6)、エチントラクトン(C7)

及びカプロリロラクトン（C8）もポリエステル成分として有用である。

これらの中で ϵ -カプロラクトンが使用に際して望ましい。

③ソフトセグメント構成成分としてのポリエーテル

- 5 ポリ（エチレンオキシド）グリコール、ポリ（1，2-プロピレンオキシド）グリコール、ポリ（1，3-プロピレンオキシド）グリコール、ポリ（テトラメチレンオキシド）グリコール等のポリ（アルキレンオキシド）グリコール類が挙げられ、これらの中でポリ（テトラメチレンオキシド）グリコールが使用に際して望ましい。
- 10 上記TPEEは、慣用の方法で製造が可能である。具体的には、ジカルボン酸の低級アルキルエステルを脂肪族長鎖グリコール及び過剰の低分子グリコールをテトラブチルチタネート等の触媒の存在下で150～200℃の温度で加熱し、エステル交換反応を行い、まず低重合体を形成し、さらにこの低重合体を高真空下、220～
- 15 280℃で加熱攪拌し、重縮合を行いTPEEとする。前記低重合体は、ジカルボン酸と長鎖グリコール及び低分子グリコールとの直接エステル化反応によっても得ることができる。

- 上記において、TPEEを塗膜形成ポリマーの全部とせず主体とする場合に組み合わせ可能なポリマーとしては、TPEEと混和可
- 20 能なポリマーならとくに限定されず、通常のエステル系樹脂（PBT、PET等）、アミド系樹脂、さらには、アミド系TPE等任意であり、通常、ポリマー全体に占める割合は、50%未満、望ましくは30%未満とする。

- このようなTPEEは、溶液タイプの形態で添加してもよいが、
- 25 加工性及び環境保護の観点より水性エマルジョンの形態で添加することが望ましい。

この水性エマルジョン化は慣用の方法により行うことができるが、具体的には、ポリマーを界面活性剤（外部乳化剤）の存在下、高い機械的剪断をかけて強制的に乳化させる強制乳化法が望ましい。

通常使用される界面活性剤としては、①アニオン系界面活性剤；
5 ラウリルベンゼンスルホン酸 Na 等のアルキルベンゼンスルホン酸ソーダ類、ナトリウムジオクチルスルホサクシネート、②カチオン系界面活性剤；第4級アンモニウム塩、③ノニオン系界面活性剤；ポリエチレングリコール、長鎖アルコールのエチレンオキサイド付加物、アルキルフェノールのエチレンオキサイド付加物等が挙げら
10 れる。これらの中でラウリルベンゼンスルホン酸 Na が使用に際して望ましい。

また、ポリマーにイオン性の親水基を導入し、乳化剤の助力なしに水中に分散安定させる自己乳化法で行う又は併用してもよい。

該プライマー組成物（塗料）は、屈折率の調整や強度の向上等を
15 目的として金属酸化物微粒子（複合微粒子を含む。）を含有させることが望ましい。

この金属酸化物微粒子は、前述のハードコートに使用したものを使用でき、取扱性の見地から金属酸化物微粒子（コロイド粒子）のコロイド溶液（ゾル）の形態で添加することが望ましい。このコロ
20 イド溶液は、適宜、その分散媒を後述のプライマーに使用する極性溶剤の置換して使用することが望ましい。

例えば、平均粒径が $1 \sim 100 \mu\text{m}$ 、望ましくは $5 \sim 50 \mu\text{m}$ のコロイダルシリカ、コロイダルチタニア、コロイダルジルコニア、コロイダル酸化セリウム（IV）、コロイダル酸化タンタル（V）、
25 コロイダル酸化スズ（IV）、コロイダル酸化アンチモン（III）、コロイダルアルミナ、コロイダル酸化鉄（III）等を使用でき、こ

れらは、単一使用の他に、2種以上を併用、または複合微粒子として使用することも可能である。

このとき、金属酸化物微粒子の配合比率（重量）は、金属酸化物微粒子／TPPE＝1／99～80／20、望ましくは2／98
5 ～70／30、より望ましくは4／96～60／40とする。金属微粒子が1％未満では屈折率調整作用を奏し難く、80％を越えると耐衝撃性に劣り、また、光の散乱により曇りが目立つようになる。

(e) そしてこれらの各成分からなる本発明のプライマー組成物は
10 、通常、前記ハードコート用塗料に使用したのと同様の極性溶剤、即ち、アルコール類、ケトン類、エステル類、エーテル類及びセロソルブ類（エチレングリコールのモノアルキルエーテル）等の1種または2種以上を併用して希釈して使用する。

また、本発明のプライマー組成物は、ベンゾフェノン系、ベンゾ
15 トリアゾール系及びフェノール系等の紫外線吸収剤の配合や、塗膜の平滑性を向上させるためにシリコン系界面活性剤、フッ素系界面活性剤等を含むレベリング剤、その他改質剤の配合も可能である。

塗布（コーティング）方法としては、ディッピング法、スピン
20 ート法等の公知の方法から選ばれる。プライマー層の硬化は、予備硬化と本硬化とからなる。予備硬化の条件は、室温～150℃×3分～2h、望ましくは80～110℃×5min～1hとする。本硬化はシリコン系ハードコートと同時に行うため、条件は前述のハードコートの硬化条件（80～130℃×1～4h）となる。高温
25 長時間にて予備硬化を進めすぎると、上層のシリコン系ハードコート膜との密着性が低下し、また、予備硬化が不十分なときは、塗

膜の白化を招くおそれがある。

このプライマー層の膜厚は、 $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ 、望ましくは $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ とする。 $0.01 \mu\text{m}$ 未満であると耐衝撃性の効果が望めず、 $10 \mu\text{m}$ を越えると面精度に問題を生じ易い。

- 5 その他の改質剤として、ポリビニルブチラールが、耐衝撃性を低下させることなく膜厚を向上させる増粘剤として使用できる。添加量としては $0 \sim 5\%$ （固形分換算）で、 5% を越えると面精度に問題が生じたり、プライマー膜の耐水性が低下する。

- 10 メラミン樹脂等の熱硬化性樹脂を、塗膜硬度を調節するのに使用できる。添加量としては、 $0 \sim 20\%$ （固形分換算）で、 20% を越えると耐衝撃性に支障をきたす。

- 15 B. (a) 本発明のハードコート組成物は、モノエポキシ有機基含有アルコキシシランを主体とするアルコキシシランの加水分解物をマトリックス形成成分として、チタニア系酸化金属複合微粒子を光学的干渉制御剤とすることを前提的要件とする。

(b) 本発明の最大の特徴は、チタニア系酸化金属複合微粒子が、 TiO_2 を主体とし SiO_2 を主副成分とし、更に、 ZrO_2 及び K_2O を微量副成分とするものがある。

- 20 具体的には、チタニア系複合微粒子の仕様は、高屈折率対応特性（屈折率向上作用）が得られ、かつ、上記光学的干渉抑制剤の作用を奏する範囲なら、特に限定されるものではない。

- (1) 複合微粒子の平均粒径を $1 \sim 100 \text{nm}$ 、望ましくは、 $2 \sim 50 \text{nm}$ 、更に望ましくは、 $4 \sim 25 \text{nm}$ とする。複合微粒子の粒径が小さいと耐摩耗性が期待できないとともに、凝集が発生しやす
25 く、塗膜の均一性が阻害されるおそれがある。逆に、複合微粒子の粒径が大きいと、塗膜が白化しやすく、外観性を損なうおそれがある。

る。

(2) 各金属酸化物の組成は

$\text{SiO}_2 / \text{TiO}_2 = 0.1900 \sim 0.2100$ 、望ましくは、 $0.1950 \sim 0.2050$

5 $\text{ZrO}_2 / \text{TiO}_2 = 0.0015 \sim 0.023$ 、望ましくは、 $0.002 \sim 0.020$

$\text{K}_2\text{O} / \text{TiO}_2 = 0.0012 \sim 0.012$ 、望ましくは、 $0.002 \sim 0.010$

$\text{SiO}_2 / \text{ZrO}_2 / \text{K}_2\text{O} = 100 / 0.789 / 0.632 \sim 100$
10 $/ 10.953 / 5.714$ 、望ましくは、 $100 / 1.026 / 1.026 \sim 100$
 $/ 9.756 / 4.878$

の各重量比率を満足するものとする。

酸化金属複合微粒子は TiO_2 に、 SiO_2 、 ZrO_2 及び K_2O が一体的に結合されてなるものである。このときの望ましい形態
15 は、 TiO_2 に対して各副成分が均一に溶け合っている置換形固溶体とする。

ここで、主副成分ある SiO_2 は、塗料調製に際してのシラン化合物（アルコキシシラン加水分解物）との混和性を増大させる作用とともに、塗膜の耐光性を向上させる作用も奏する。 SiO_2 の比
20 率が大きいと、 TiO_2 の有する屈折率向上作用が阻害され、高屈折対応が困難となる。

また、微量副成分である ZrO_2 及び K_2O は、相乗して TiO_2 の有する屈折率向上作用を阻害せずに TiO_2 の光学活性を抑制する作用を奏する。 ZrO_2 及び K_2O の一方が過多では、上記光
25 学活性抑制の相乗作用を得難い。

従って塗膜及び被塗布物（有機ガラス）双方の近紫外線による劣

化作用を低減させることができる。

(3) 上記酸化金属複合微粒子の製造方法は例えば特開平 2-178219 号公報に記載されている方法と類似の方法で行う。即ち、
TiO₂ 水和ゾル及び ZrO₂・K₂O 水和ゾルを調製して解膠さ
5 せた後、過酸化水素を加え溶解させ、さらにケイ酸分散液を添加し
て高温にて加水分解させる。上記ケイ酸分散液は例えばアルカリケ
イ酸水溶液を脱アルカリすることにより調製される。上記加水分解
物は微粒子の分散液である。この微粒子分散液はイオン交換法・逆
浸透法・限外濾過法・真空蒸着法により精製処理することが望まし
10 い。

なお、上記複合微粒子はシランカップリング剤で表面改質して用
いることが望ましい。このように酸化金属複合微粒子を表面改質す
ることによりシラン化合物との混和性がさらに向上し塗膜後の美観
でクモリの軽減ができる。表面改質とは、TiO₂・ZrO₂・S
15 iO₂・K₂O に残存している水酸基をシランカップリング剤でブ
ロックすることにより複合微粒子の分散性を良好にする処理をいう
。この表面改質は慣用の方法で行うことができる。例えば下記の有
機シラン化合物を溶かしたアルコール溶液に浸漬して行う。

シランカップリング剤（表面改質剤）としては、テトラメトキシ
20 シラン、メチルトリメトキシシラン、トリメチルクロロシラン、ビ
ニルトリエトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリエトキシ
シラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン等を、
好適に使用できる。

(4) この複合微粒子の配合量は、上記アルコキシシラン全量 10
25 0 部に対して 10～500 部、望ましくは 20～200 部、更に望
ましくは 40～100 部とする。

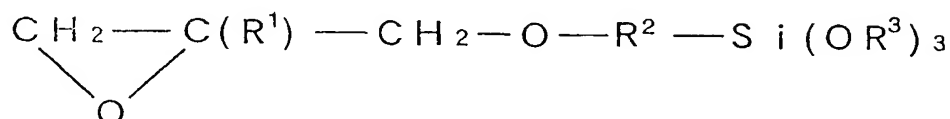
当該酸化金属複合微粒子が少ないと十分な塗膜硬度が得られないとともに、高屈折率基材対応が困難となり、逆に、多いと、塗膜白化現象やハードコート塗膜の硬化（熱重合）時にクラックによる外観不良が発生しやすくなる。

- 5 (c) 本発明のハードコート組成物におけるマトリックス形成成分は、(1) アルコキシシランの加水分解物と(2) 硬化剤としての有機金属化合物を主成分とするものである。

(1) 上記アルコキシシランは、モノエポキシ基含有トリアルコキシシランを主体とし、通常、テトラアルコキシシランを併用するものである。

そして、上記トリアルコキシシランは、

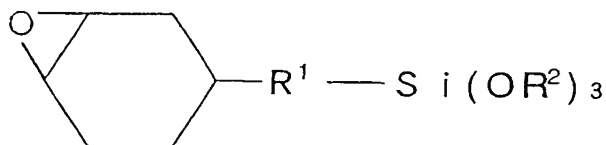
一般式①



15

(ただし、 R^1 は H または CH_3 、 R^2 は炭素数 1～4 のアルキレン基、 R^3 は炭素数 1～4 のアルキル基) で表される、又は、

一般式②



20

(ただし R^1 は炭素数 1～4 のアルキレン基、 R^2 は炭素数 1～4 のアルキル基) で示される

群から選択される 1 種又は 2 種以上からなることが望ましい。

- 25 上記一般式①の具体例としては、下記のことを挙げる事ができ、これらの化合物のなかで、特に、 R^2 が炭素数 3～4 のものが望

ましい。

- グリシドキシメチルトリメトキシシラン、
グリシドキシメチルトリエトキシシラン、
グリシドキシメチルトリプロポキシシラン、
5 グリシドキシメチルトリブトキシシラン、
 α -グリシドキシエチルトリメトキシシラン、
 α -グリシドキシエチルトリエトキシシラン、
 α -グリシドキシエチルトリプロポキシシラン、
 α -グリシドキシエチルトリブトキシシラン、
10 β -グリシドキシエチルトリメトキシシラン、
 β -グリシドキシエチルトリエトキシシラン、
 β -グリシドキシエチルトリプロポキシシラン、
 β -グリシドキシエチルトリブトキシシラン、
 α -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
15 α -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
 α -グリシドキシプロピルトリプロポキシシラン、
 α -グリシドキシプロピルトリブトキシシラン、
 β -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
 β -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
20 β -グリシドキシプロピルトリプロポキシシラン、
 β -グリシドキシプロピルトリブトキシシラン、
 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
 γ -グリシドキシプロピルトリプロポキシシラン、
25 γ -グリシドキシプロピルトリブトキシシラン、
 α -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、

- α -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、
 α -グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、
 α -グリシドキシブチルトリブトキシシラン、
 β -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、
5 β -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、
 β -グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、
 β -グリシドキシブチルトリブトキシシラン、
 γ -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、
 γ -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、
10 γ -グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、
 γ -グリシドキシブチルトリブトキシシラン、
 δ -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、
 δ -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、
 δ -グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、
15 δ -グリシドキシブチルトリブトキシシラン、
 β -メチルグリシドキシメチルトリメトキシシラン、
 β -メチルグリシドキシメチルトリエトキシシラン、
 β -メチルグリシドキシメチルトリプロポキシシラン、
 β -メチルグリシドキシメチルトリブトキシシラン、
20 β -メチル- α -グリシドキシエチルトリメトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシエチルトリエトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシエチルトリプロポキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシエチルトリブトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシエチルトリメトキシシラン、
25 β -メチル- β -グリシドキシエチルトリエトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシエチルトリプロポキシシラン、

β -メチル- β -グリシドキシエチルトリプトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシプロピルトリプロボキシシラン

5 、

β -メチル- α -グリシドキシプロピルトリプトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシプロピルトリプロボキシシラン

10 、

β -メチル- β -グリシドキシプロピルトリプトキシシラン、
 β -メチル- γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、
 β -メチル- γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、
 β -メチル- γ -グリシドキシプロピルトリプロボキシシラン

15 、

β -メチル- γ -グリシドキシプロピルトリプトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、
 β -メチル- α -グリシドキシブチルトリプロボキシシラン、

20

β -メチル- α -グリシドキシブチルトリプトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシブチルトリプロボキシシラン、
 β -メチル- β -グリシドキシブチルトリプトキシシラン、

25

β -メチル- γ -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、
 β -メチル- γ -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、

- β -メチル- γ -グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、
 β -メチル- γ -グリシドキシブチルトリブトキシシラン、
 β -メチル- δ -グリシドキシブチルトリメトキシシラン、
 β -メチル- δ -グリシドキシブチルトリエトキシシラン、
5 β -メチル- δ -グリシドキシブチルトリプロポキシシラン、
 β -メチル- δ -グリシドキシブチルトリブトキシシラン。

上記一般式②の具体例としては、下記のことを挙げることができ、これらの化合物のなかで、特に、 R^1 の炭素数2~4のものが望ましい。

- 10 (3, 4-エポキシシクロヘキシル)メチルトリメトキシシラン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)メチルトリエトキシシラン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)メチルトリプロポキシシ
15 ラン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)メチルトリブトキシシラン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリエトキシシラ
20 ン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリプロポキシシラン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリブトキシシラ
25 ン、
(3, 4-エポキシシクロヘキシル)プロピルトリメトキシシ

ラン、

(3, 4-エポキシシクロヘキシル) プロピルトリエトキシシ
ラン、

(3, 4-エポキシシクロヘキシル) プロピルトリプロボキシ
5 シラン、

(3, 4-エポキシシクロヘキシル) プロピルトリブトキシシ
ラン、

(3, 4-エポキシシクロヘキシル) ブチルトリメトキシシラ
ン、

10 (3, 4-エポキシシクロヘキシル) ブチルトリエトキシシラ
ン、

(3, 4-エポキシシクロヘキシル) ブチルトリプロボキシシ
ラン、

(3, 4-エポキシシクロヘキシル) ブチルトリブトキシシラ
15 ン。

上記トリアルコキシシランと併用するテトラアルコキシシランと
しては、

一般式③ $\text{Si}(\text{OR}^1)_4$

(ただし、 R^1 は炭素数 1～4 のアルキル基)

20 で示されるもののの中から 1 種又は 2 種以上選択して使用すること
が望ましい。

より具体的にはテトラエトキシシラン、テトラメトキシシラン、
テトラプロボキシシラン、テトラブトキシシラン等を挙げることが
できる。

25 上記アルコキシシランの加水分解物は、アルコキシシランをメタ
ノールやエタノール等の低級アルコールの存在下で 0.01～0.

1 N の希酸を滴下し加水分解を行って調製する。希酸としては具体的に塩酸、硫酸、リン酸、酢酸、ギ酸、シュウ酸、スルホン酸等を用いることが可能である。

そして上記エポキシ含有トリアルコキシシランに対する上記テトラアルコキシシランの配合割合はトリアルコキシシラン 100 部に対してテトラアルコキシシランを 5.3 ~ 25 重量部とする。この配合割合を外れると十分な塗膜硬度と良好な外観を得難い。即ちテトラアルコキシシランが過多では有機レンズ塗膜後熱重合時にクラックによる外観不良が発生し、過少では十分な塗膜硬度が得難い。

10 (2) 上記有機金属化合物（金属キレート）としては、エチレンジアミン四酢酸、ヘキサフルオロアセチルアセトン、トリフルオロアセチルアセトン、アセチルアセトン、アセト酢酸メチルから選ばれるキレート化剤が配位した Cr (III)、Co (III)、Fe (II)
15 (I)、Zn (II)、In (III)、Zr (IV)、Y (III)、Al (III)、Sn、V、Ti (II) のいずれかから 1 種または 2 種以上選択して使用できる。

これらの内で、アセチルアセトン鉄 (III)、ヘキサフルオロアセチルアセトン鉄 (III)、アセチルアセトン錫、アセチルアセトンバナジル、アセチルアセトンインジウム (III)、アセチルアセ
20 トンジルコニウム (IV)、アセチルアセトン第二コバルト (III)、アセチルアセトンチタン (II)、アセチルアセトンアルミニウム (III) が望ましい。

この有機金属化合物の添加量はアルコキシシラン加水分解物合計量（固形分）100 部に対して 0.1 ~ 10 部（望ましくは 0.3
25 ~ 5 部）とする。

なお、アルコキシシラン化合物は、加水分解物とすると、通常、

重量にして 25～35%が減少する。

さらに本発明のハードコート組成物には塗膜性及び外観性能を改良するため必要に応じて微量の紫外線吸収剤、酸化防止剤、分散染料、帯電防止剤、界面活性剤を添加することは可能である。

- 5 具体的には紫外線吸収剤として、ベンゾトリアゾール系とベンゾフェノン系等を用いることが可能で、ヒンダードアミン系は酸化防止剤との併用が有効である。分散染料として水分散染料を用いる。

- 界面活性剤としては、疎水基がジメチルシリコンオイル、親水基がポリエーテルから構成されるノニオン型の界面活性剤は平滑性
10 と帯電防止性を向上させる目的で使用する事が望ましい。これらの特性はフッ素系界面活性剤等によっても得られるが、フッ素系界面活性剤のうち、特に高分子のものでは(C)成分である TiO_2 / SiO_2 / ZrO_2 / K_2O 酸化金属複合微粒子と組み合わせさせて使用した場合、該酸化金属複合微粒子を凝集させやすくする特性
15 もあるため使用時は注意が必要である。また界面活性剤の使用量として、ハードコート組成物(マトリックス形成成分と酸化金属複合微粒子の合計量)100部に対して0.01～0.5部(望ましくは0.03～0.3部)で用いる。0.01部未満では十分な平滑性と帯電防止性が得難く、0.5部を超えるとシリコン系界面活
20 性剤を用いても成膜時にクモリが発生し易い。

C. 本発明の光学要素は、有機ガラスの表面に、シリコン系硬化塗膜が形成されてなる光学要素において、前記有機ガラスとシリコン系硬化塗膜との間に、上記プライマー層が介在されていることを特徴とするものである。

- 25 また、本発明の光学要素は、上記構成のハードコート組成物で形成されてなるハードコート層を、屈折率1.66以上を示す有機ガ

ラス基材上に備えているものである。

ここで、有機ガラスとしては、例えば、①ポリオール、ポリチオール及びメルカプト基を有するヒドロキシ化合物からなる活性水素化合物と、②ポリイソチオシアナート化合物、イソシアナート基を
5 有するイソチオシアナート化合物の群から選択される1種又は2種以上とを重合反応させて得られる有機ガラスを好適に使用できる（例えば、特開平2-167330号公報等参照）。このイソチオシアナート化合物には、イソチオシアナート基の他に1以上の硫黄原子を有したものも用いられる。

10 上記ポリイソチオシアナートとは、1分子中に-NCS基を2つ以上含有する化合物を意味し、イソチオシアナート基の他に1個以上の硫黄原子を有したものでよい。

例えば、1,2-ジイソチオシアナートエタン、1,3-ジイソチオシアナートプロパン、1,4-ジイソチオシアナートブタン、
15 1,6-ジイソチオシアナートヘキサン、p-フェニレンジイソプロピリレンジイソチオシアナート等の脂肪族イソチオシアナート、シクロヘキサンジイソチオシアナート等の脂環族イソチオシアナート、

1,2-ジイソチオシアナートベンゼン、1,4-ジイソチオシアナートベンゼン、2,4-ジイソチオシアナートトルエン、2,
20 5-ジイソチオシアナート-m-キシレン、4,4-ジイソチオシアナート-1,1-ビフェニル、1,1-メチレンビス(4-イソチオシアナートベンゼン)、1,1-メチレンビス(4-イソチオシアナート-2-メチルベンゼン)、1,1-メチレンビス(4-
25 イソチオシアナート-3-メチルベンゼン)等の複素環含有イソチオシアナート 更には、ヘキサンジオイルジイソチオシアナート、

ノナンジオイルジイソチオシアナート、カルボニックジイソチオシアナート等のカルボニルイソチオシアナート等を好適に使用できる。

5 イソチオシアナート基の他に1つ以上の硫黄原子を含有するポリイソチオシアナートとしては、

チオビス(3-イソチオシアナートプロパン)、チオビス(2-イソチオシアナートエタン)、ジチオビス(2-イソチオシアナートエタン)等の含硫脂肪族イソチオシアナート；

10 1-イソチオシアナート-4-((2-イソチオシアナートエチル)スルホニル)ベンゼン、チオビス(4-イソチオシアナートベンゼン)等の含硫芳香族イソチオシアナート；

チオフェン-2,5-ジイソチオシアナート、1,4-ジチアン-2,5-ジイソチオシアナート等の含硫複素環化合物等を好適に使用できる。

15 前記イソシアナート基を有するイソチオシアナート化合物としては、例えば、1-イソシアナート-3-イソチオシアナートプロパン、1-イソシアナート-5-イソチオシアナートペンタン、1-イソシアナート-6-イソチオシアナートヘキサン、1-イソシアナート-4-イソチオシアナートシクロヘキサン等の脂肪族あるいは脂環式化合物；

20 1-イソシアナート-4-イソチオシアナートベンゼン等の芳香族化合物等を好適に使用できる。

上記活性水素化合物は、ポリオール、ポリチオール、メルカプト基を有するヒドロキシ化合物より1種又は2種以上を選択することができる。

ポリオールとしては、例えば、エチレングリコール、ジエチレン

グリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、ブチレングリコール、ネオペンチルグリコール、グリセリン、トリメチロールエタン、トリメチロールプロパン、ブタントリオール、1, 2-メチルグルコシド、ペンタエリトリトール、ジペンタエリトリトール、トリペンタエリトリトール、ソルビトール、エリトリトール、スレイトール、リビトール、アラビニトール、キシリトール、アリトール、マニトール、ドルシトール、イディトール、グリコール、イノシトール、ヘキサントリオール、トリグリセロール、ジグリペロール、トリエチレングリコール、ポリエチレングリコール、10、トリス(2-ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、シクロブタンジオール、シクロペンタンジオール、シクロヘキサジオール、シクロヘプタンジオール、シクロオクタンジオール、シクロヘキサジメタノール、ヒドロキシプロピルシクロヘキサノール、ビスシクロ(4, 3, 0)-ノナンジオール、ジシクロヘキサジオール、15、トリシクロ(5, 3, 1, 1)ドデカンジオール、ビスシクロ(4, 3, 0)ノナンジメタノール、トリシクロ(5, 3, 1, 1)ドデカンジエタノール、ヒドロキシプロピルトリシクロ(5, 3, 1, 1)ドデカノール、スピロ(3, 4)オクタンジオール、ブチルシクロヘキサジオール、1, 1-ビスシクロヘキシリデンジオール、20、シクロヘキサントリオール、マルチトール、ラクチトール等の脂肪族ポリオール；

ジヒドロキシナフタレン、トリヒドロキシナフタレン、テトラヒドロキシナフタレン、ジヒドロキシベンゼン、ベンゼントリオール、ビフェニルテトラオール、ピロガロール、(ヒドロキシナフチル) 25、ピロガロール、トリヒドロキシフェナントレン、ビスフェノールA、ビスフェノールF、キシリレングリコール、ジ(2-ヒドロキ

シエトキシ) ベンゼン、ビスフェノール A-ビス- (2-ヒドロキシエチルエーテル)、テトラブロムビスフェノール A-ビス- (2-ヒドロキシエチルエーテル) 等の芳香族ポリオール;

ジブロモネオペンチルグリコール等のハロゲン化ポリオール;

5 エポキシ樹脂等の高分子ポリオール;

更には、シュウ酸、グルタミン酸、アジピン酸、酢酸、プロピオン酸、シクロヘキサンカルボン酸、 β -オキシシクロヘキサンプロピオン酸、ダイマー酸、フタル酸、イソフタル酸、サリチル酸、3-ブロモプロピオン酸、2-ブロモグリコール、ジカルボキシシクロ
10 ロヘキサン、ピロメリット酸、ブタンテトラカルボン酸、ブromoフタル酸等の有機酸と、前記ポリオールとエチレンオキサイドやプロピレンオキサイド等アルキレンオキサイドとの付加反応生成物;

アルキレンポリアミンとエチレンオキサイドやプロピレンオキサイド等、アルキレンオキサイドとの付加反応生成物;

15 ビス- (4- (2-ヒドロキシエトキシ) フェニル) スルフィド、ビス- (4- (2-ヒドロキシプロボキシ) フェニル) スルフィド及びプロピレンオキシドが付加された化合物、ジ- (2-ヒドロキシエチル) スルフィド)、1, 2-ビス (2-ヒドロキシエチルメルカプト) エタン、1, 5-ジヒドロキシー 1, 4-ジチアン等
20 の硫黄原子を含有したポリオール等を好適に使用できる。

またポリチオールとしては、メタンジチオール、1, 2-エタンジチオール、1, 1-プロパンチオール、1, 1-シクロヘキサンジチオール、2, 2-シクロヘキサンジチオール、ジエチレングリ
25 コールビス (2-メルカプトアセテート)、エチレングリコールビス (2-メルカプトアセテート) 等の脂肪族ポリチオール;

1, 2-ジメルカプトベンゼン、1, 2, 3-トリメルカプトベ

ンゼン、1, 2, 3-トリス(メルカプトエチレンオキシ)ベンゼン、1, 2, 3, 5-テトラメルカプトベンゼン、1, 4-ナフタレンジチオール、2, 4-ジメチルベンゼン-1, 3-ジチオール等の芳香族ポリチオール；

- 5 2, 5-ジクロロベンゼン-1, 3-ジチオール、3, 4, 5-トリブロム-1, 2-ジメルカプトベンゼン等の塩素置換体、臭素置換体等のハロゲン置換芳香族ポリチオール；

- 2-メチルアミノ-4, 6-ジチオール-sym-トリアジン、2-シクロヘキシルアミノ-4, 6-ジチオール-sym-トリアジン等の
10 複素環を含有したポリチオール；

1, 2-ビス(メルカプトメチルチオ)ベンゼン等の核アルキル化物等のメルカプト基以外に硫黄原子を含有する芳香族ポリチオール；

- ビス(メルカプトメチル)スルフィド、ビス(メルカプトメチル
15 チオ)メタン、テトラキス(メルカプトメチルチオメチル)メタン等、またこれらのチオグリコール酸及びメルカプトプロピオン酸のエステル、ヒドロキシメチルスルフィドビス(2-メルカプトアセテート)、2-メルカプトエチルエーテルビス(2-メルカプトアセテート)、1, 4-ジチアン-2, 5-ジオールビス(2-メル
20 カプトアセテート)、チオグリコール酸ビス(2-メルカプトエチルエステル)等のメルカプト基以外に硫黄原子を含有する脂肪族ポリチオール；

3, 4-チオフエンジチオール等のメルカプト基以外に硫黄原子を含有する複素環化合物等を好適に使用できる。

- 25 また、メルカプト基(チオール基)を有するヒドロキシ化合物としては、

2-メルカプトエタノール、3-メルカプト-1, 2-プロパンジオール、グリセリンジ(メルカプトアセテート)、1-ヒドロキシ-4-メルカプトシクロヘキサン、2, 4-ジメルカプトフェノール、2-メルカプトヒドロキノン、4-メルカプトフェノール、3, 4-ジメルカプト-2-プロパノール、1, 3-ジメルカプト-2-プロパノール、2, 3-ジメルカプト-1-プロパノール、1, 2-ジメルカプト-1, 3-ブタンジオール、ペンタエリトリートリス(3-メルカプトプロピオネート)、ペンタエリトリートルモノ(3-メルカプトプロピオネート)、ペンタエリトリートルビス(3-メルカプトプロピオネート)、ペンタエリトリートルトリス(チオグリコール)、ペンタエリトリートルペンタキス(3-メルカプトプロピオネート)、ヒドロキシメチルトリス(メルカプトエチルチオメチル)メタン、1-ヒドロキシエチルチオ-3-メルカプトエチルチобенゼン、4-ヒドロキシ-4-メルカプトジフェニルスルホン、2-(2-メルカプトエチルチオ)エタノール、ジヒドロキシエチルスルフィドモノ(3-メルカプトプロピオネート)、ジメルカプトエタンモノ(サルチレート)、ヒドロキシエチルチオメチルトリス(メルカプトエチルチオ)メタン等が挙げられる。

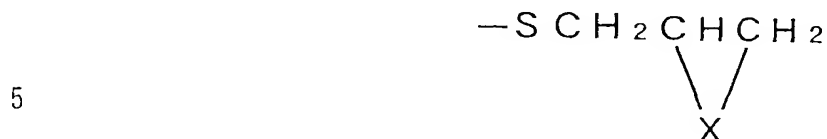
さらに、これら活性水素化合物の塩素置換体、臭素置換体のハロゲン置換体も使用は可能である。これらは単独で用いることも、また2種以上を混合して用いることも可能である。

そして、本発明の光学要素に使用する有機ガラスは、上記イソチオシアナート化合物及び活性水素化合物とを、 $(\text{NCO} + \text{NCS}) / (\text{OH} + \text{SH})$ の官能基モル比が、通常0.5~3.0、望ましくは0.5~1.5、更に望ましくは0.8~1.2の範囲内とな

るように重合反応させて得る。

別の高屈折率を示す有機ガラスとしては、

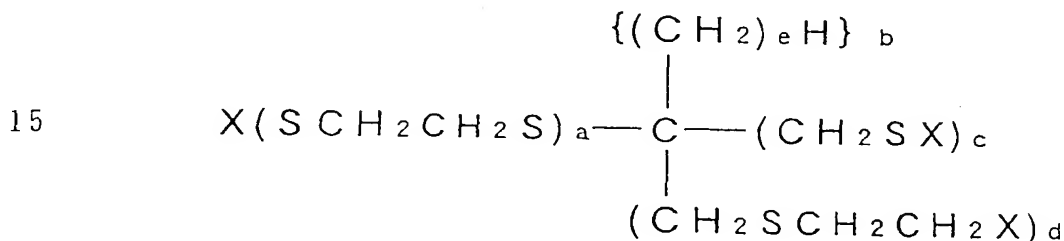
下記一般式④



(ただし、XはSまたはOを表し、このSの個数は三員環を構成するSとOの合計に対して平均で50%以上である。)

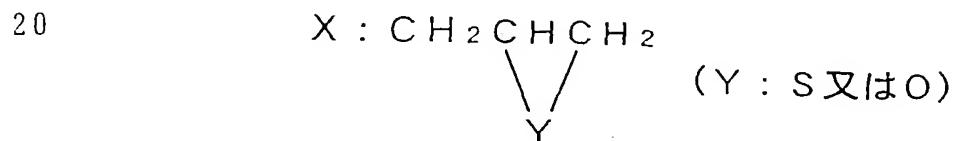
10 で表される構造を2個以上有し、環状骨格を有するエピスルフィド化合物を重合硬化して得られる有機ガラスを好適に使用できる(例えば、特開平9-71580号公報参照)。

具体的には一般式⑤



で構造で表されるものを好適に使用できる。

(ただし、



25 a, b, c, d, e : a + b + c + d = 4, a, b = 0又は1、
c, d = 0、1、2、3又は4、e = 0、1、2又は3を満足する
整数)

上記被塗布物(有機ガラス)への塗布方法としては刷毛塗り塗装

、浸漬塗装、ローラ塗装、スプレー塗装、スピン塗装等を挙げることができる。また乾燥硬化条件の例としては、 $60^{\circ}\text{C} \sim 150^{\circ}\text{C}$ で、特に好ましくは、 $80 \sim 120^{\circ}\text{C} \times 1 \sim 5$ 時間として挙げられ、硬化後得られる塗膜としては $0.5 \mu\text{m} \sim 20 \mu\text{m}$ である。

- 5 被塗布物の本発明の組成物を、塗布する前に、酸アルカリ洗浄溶剤による脱脂洗浄、プラズマ処理、超音波洗浄等を行うことが望ましい。

D. 前記ハードコート層の上に、更に、無機物質系の反射防止膜を積層することが望ましい。

- 10 硬化塗膜上に形成することが可能な反射防止膜としては、金属単体、金属酸化物、金属フッ化物等の無機物が挙げられる。金属酸化物としては SiO_2 、 SiO 、 TiO_2 、 Ta_2O_5 、 CeO_2 、 Nb_2O_5 、 Sb_2O_3 、 ZrO_2 、 Al_2O_3 、 Y_2O_3 、金属フッ化物としては MgF_2 等の中から適宜単独または二種以上選択して使用可能である。また、不透明な金属ジルコニウムや TiO 、 Ti_2O_3 、 Ti_3O_5 等の物質を出発原料とし、後述の方法で成膜することも可能である。

- 20 ハードコート膜上に設ける反射防止膜は、基本的な膜構成として光学膜厚が基板（ハードコート）側から $\lambda/2$ 、 $\lambda/4$ の二層タイプ、 $\lambda/4$ 、 $\lambda/2$ 、 $\lambda/4$ の三層タイプなどの多層構造を有するものであるが、反射防止の波長エリアを広くできることから三層タイプが好ましい。

- 25 本発明においては、反射防止膜として、設計中心波長 λ を $450 \sim 550 \text{ nm}$ とし、前記ハードコート層側から、光学膜厚 $0.19 \sim 0.29 \lambda$ の中屈折率層、光学膜厚 $0.42 \sim 0.58 \lambda$ の高屈折率層、光学膜厚 $0.19 \sim 0.29 \lambda$ の低屈折率層の順に成膜さ

せたものを使用することが望ましい。反射防止膜が対応可能な波長エリアを広くすることができるためである。

各層の膜厚、及び屈折率は、下層となるハードコート膜の屈折率により異なる。具体例としては、各光学膜厚を中屈折率層：100
5 ～140nm、高屈折率層：220～260nm、低屈折率層：100～140nmとし、下記に示す無機材料を使用した構成等で用いることができる。

- (α) SiO_2 / ZrO_2 : 1 / 4 λ (中屈折率層)
 ZrO_2 : 1 / 2 λ (高屈折率層)
 10 SiO_2 : 1 / 4 λ (低屈折率層)
 (β) SiO_2 / TiO_2 : 1 / 4 λ (中屈折率層)
 TiO_2 : 1 / 2 λ (高屈折率層)
 SiO_2 : 1 / 4 λ (低屈折率層)

適切な屈折率を有する物質がない場合は、屈折率の異なる物質を
 15 2層以上用いた等価膜を使用することができる。上記具体例における中屈折率層は、高屈折率層及び低屈折率層で使用した物質を用いて形成された等価膜法で形成することが望ましい。

ここで、等価膜法とは、反射防止膜の設計上、使用したい屈折率の物質がない場合、その物質より高い屈折率物質と低い屈折率物質
 20 とを交互に成膜して、光学等価的な多層膜で代用する方法をいう。

E. 本発明の反射防止膜を成膜する際は、反射防止膜のハードコート膜への付着力を高めるため、前処理としてハードコート膜の表面処理を行うことが望ましい。具体的な例としては、酸、アルカリによる薬品処理、高周波によるアルゴンまたは酸素プラズマ処理、
 25 イオン銃による酸素イオンまたはアルゴンイオン照射処理等が挙げられる。

上記のうち、特にイオンクリーニング処理行うことが、良好な表面を得ることができ望ましい。

また、反射防止膜の成膜方法としては、上記無機粉体を真空蒸着、スパッタリング、イオンプレーティング等の乾式メッキ法を使用して蒸着する方法が可能である。

少なくとも高屈折率層の成膜は、イオンビームアシスト法を使用して蒸着を行う。その他の膜については、勿論イオンビームアシスト法を使用してもよいし、その他の物理的蒸着法を使用してもよい。

10 なお、「イオンクリーニング」及び「イオンビームアシスト」については特開平10-123301・11-174205号公報等に詳細に記載されている。

F. 本発明の有機ガラス染色用組成物は、非水溶性染料とサイズ剤（染料支持樹脂）と染料溶解剤とを含むことを基本構成とする。

15 なお、以下の説明で、染色対象物となる有機ガラス基材又はハードコート層を備えた有機ガラス基材は「被染基材」という。

非水溶性染料を使用するのは、高屈折の有機ガラスに対する染色性（有機ガラスに対する移染性）が良好であるとともに、昇華性の高いものが得易いためである。

20 ここで、昇華性のレベルは、常温／大気圧下で昇華性を示すレベルである必要はなく、加熱雰囲気及び／又は減圧下で昇華性を示すレベルでよい。

非水溶性性染料としては、汎用の分散染料（Disperse Dyes）又は油溶性染料（Solvent Dyes）を好適に使用できる。

25 分散染料としては、「スミカロン（Sumikaron）」住友化学社製；「ダイアセリトン（Diacelliton）」「ダイアニックス（Dianix

）」「サマロン (Samaron)」三菱化成ヘキスト社製；「カヤロンポリエステル (Kayalon Polyester)」日本化薬社製；「ミケトンポリエステル (Miketon Polyester)」三井化学社製、等の各商品名で上市されているものを挙げるができる。

- 5 油溶性染料としては、「スピリット (Spilit)」住友化学社製；「オリエントオイル (Orient Oil)」オリエント化学社製；「ミツイ P S」三井化学社製、等の各商品名で上市されているものを挙げるができる。

- 10 上記非水溶性染料である分散染料や油溶性染料には、これらの染料と同等の昇華性を示す紫外線吸収剤や蛍光増白剤（非水溶性染料の 1 種である。）を添加することができる。

上記紫外線吸収剤及び蛍光増白染料のこれらを添加した非水溶性染料全体量中の、0.1～50 wt%、望ましくは 1～20 wt% とする。

- 15 これらの紫外線吸収剤や蛍光増白剤を含む染色用組成物を有機ガラスで成形された眼鏡レンズに適用したとき、それらの機能を染色と同時的に付与できる。すなわち、眼鏡使用時において、目を紫外線から保護することができるとともに、眼鏡のファッション機能を高めることができる。

- 20 紫外線吸収剤としては、昇華性を有すれば特に限定されず、ベンゾフェノン系、ベンゾトリアゾール系、シアノアクリレート系、サリシレート系、等を使用可能である。

蛍光増白染料としては、ジアミノスチルベンジスルホン酸系、イミダゾール系、クマリン系、トリアゾール系等を使用可能である。

- 25 上記サイズ剤（のり剤：染料担持剤）としては、染料に対する担持性及び高屈折率基材に対する付着性の見地から、アクリル系樹脂

を使用する。

該サイズ剤（アクリル系樹脂）の上記染料（紫外線吸収剤、蛍光増白剤を含む）に対する配合比は、サイズ剤／染料＝60／40～5／95、望ましくは40／60～10／90とする。サイズ剤が
5 少なすぎると、染料が基材に付着しがたく、逆に、多過ぎると、染料の染着性が低下して染色（移染）に時間がかかる。

具体的には、下記に例示する樹脂成分の中から単独又は二種以上を適宜選択して使用することができる。

ここで、アクリル系樹脂としては、ガラス転移温度（ T_g ）80
10 ～120℃、望ましくは100～110℃で、平均分子量（ M_n ）1万～20万、望ましくは5万～15万の範囲内にあるものを使用することが望ましい。これらの範囲におけるアクリル系樹脂が、後述の染料溶解剤に対する溶解性及び染料支持性、基材に対する付着性・除去性に優れており望ましい。

15 ポリアクリル酸メチル、ポリアクリル酸エチル、ポリアクリル酸プロピル、ポリアクリル酸 n -ブチル、ポリ（メチル- α -シアノアクリレート）、ポリ（メチル- α -クロロアクリレート）等のアクリル系樹脂、

20 ポリメタクリル酸メチル、ポリメタクリル酸エチル、ポリメタクリル酸 n -プロピル、ポリメタクリル酸 n -ブチル、ポリメタクリル酸 t -ブチル、ポリメタクリル酸 n -ヘキシル、ポリメタクリル酸 2-エチルヘキシル、ポリメタクリル酸ラウリル、ポリメタクリル酸 i -ボルニル、ポリメタクリル酸ステアリル、ポリメタクリル酸エトキシエチル、等のメタクリル系樹脂。

25 上記染料溶解剤としては、SP値（Solubility Parameter: 溶解度パラメーター、溶解性パラメーター）8～11、望ましくは9～

10の有機溶剤を使用する。SP値が上記値からはずれると、樹脂、染料、溶剤の相互溶解性が悪くなり、目的の濃度まで着色できなかったり、染色ムラ等の外観不良を招く。

上記染料溶解剤は、有機ガラス基材及び／またはハードコート層
5の表面を冒さない（面荒れがない）ことを考慮して選択する。

具体的には、下記有機溶媒の中から単独又は二種以上を適宜選択して用いることができる（括弧内は、SP値を示す）。

ベンゼン（9.15）、トルエン（8.90）、*o*-キシレン（9.00）、*m*-キシレン（8.80）、*p*-キシレン（8.75
10）、エチルベンゼン（8.80）、ナフタレン（9.90）、テトラリン（9.50）、*n*-プロピルベンゼン（8.65）、*i*-プロピルベンゼン（8.86）、メシチレン（8.80）、*p*-シメン（8.85）等の芳香族炭化水素類、

アセトン（10.00）、メチルエチルケトン（9.30）、ジ
15エチルケトン（8.8）、ジブチルケトン（8.1）、メチル-*n*-プロピルケトン（8.7）、メチル-*n*-ブチルケトン（8.6）、メチル-*i*-アミルケトン（8.50）、メチルヘキシルケトン（8.45）、シクロヘキサノン（9.90）、アセトフェノン（9.68）等のケトン類、

20メチラール（8.52）、フラン（9.09）、 β - β -ジクロロエチルエーテル（9.80）、ジオキサン（10.00）、テトラヒドロフラン（9.90）、エチルセロソルブ（9.90）等のエーテル類。

上記有機溶剤は、少なくともエーテル類及び／又はケトン類を含むことが非水溶性染料の溶解性に優れ、かつ、被染基材（有機ガラス又はハードコート層）表面の面荒れを起こし難くて望ましい。
25

さらに、分散または溶解した昇華性染料を塗料中でより安定化させるため、また、塗料としての平滑性を向上させるために、シリコーン系界面活性剤またはフッ素系界面活性剤を配合することも可能である。

- 5 上記原料を配合して染色用組成物を製造するに際して、染色用組成物中の染料濃度は、0.01～50 wt%、望ましくは0.1～40 wt%とする。染料の濃度が高すぎると、溶解性、分散性が低下し、溶解・分散できない染料がそのままレンズに転写され、外観不良となる。また、逆に濃度が低過ぎると、ほとんど染色することがで
10 きない。

染色用組成物中のサイズ剤濃度は、0.01～40 wt%、望ましくは0.1～20 wt%とする。サイズ剤濃度が、低過ぎると染料を移染させるに十分な付着膜厚を得難く、逆に、高すぎると、付着膜の面精度（レベリング性）が低下して、染色ムラの一因となる。

- 15 そして、本発明の被染基材の染色は、上記染色用塗料を被染基材上に塗布して付着膜を形成し（糊付けを行い）、染料を昇華させることより、染料を被染基材へ移行（移染）させることにより行なう。

- 20 染色用塗料を被染基材に付着（塗布）させる方法としては、均一に付着することができれば特に限定されない。具体的には、スピコート法、ディッピング法、刷毛塗り法、スプレー法、インクジェット記録法等、公知技術を利用することができる。この時に、付着膜厚は、乾燥膜厚で、通常0.3～2 μm 、望ましくは0.5～1 μm とする。

- 25 上記染料の昇華は、通常、加熱処理により行う。加熱処理のほう
が減圧にするより、染着力が高いためである。

また、加熱処理温度は被染基材となる有機ガラスのガラス転移温度、または、シリコン系硬化塗膜の耐熱温度、または染料昇華圧（昇華温度）用塗料中の昇華性を有する染料の昇華圧（昇華温度）にもよるが、通常約 60～200℃、望ましくは約 90～170℃
5、さらに望ましくは約 100～150℃とする。

加熱処理温度が低過ぎると十分な染色性が得難く、逆に高すぎると有機ガラスに熱変形が発生するおそれがある。なお、この場合に減圧雰囲気（通常 10～800 hPa）とすれば、相対的に加熱処理温度を低くでき、かつ、処理時間も短くすることが期待できる。

10 加熱処理時間は目的とする着色濃度、被染基材の染色性の違いにより異なるが、通常 10 min～24 h、好ましくは 30 min～6 h とする。加熱処理温度・時間とも被染対象物となる有機ガラス基材、またはハードコート膜（シリコン系硬化塗膜）に悪影響がないよう配慮して選定することが必要である。

15 この加熱処理の手段としては特に限定されず、熱風循環炉、遠赤外線炉、電気炉、ドライヤー等を使用するドライ処理、湯、または熱油浴への浸漬によるウェット処理、等があるが、機器内部の温度むらが無く、かつ有機ガラスを均一に加熱可能な熱風循環炉の使用が望ましい。

20 なお、この熱処理に際して下記のような操作を加えれば、着色濃度勾配（グラデーション：gradation）を有する染色有機ガラスを容易に得ることができる。

着色濃度勾配を有する染色有機ガラスを得るには、染色用組成物を有機ガラス上に塗布した後、少なくとも塗布面に対して不均等加
25 熱を行う。

不均等加熱を行う方法としては、局部加熱が容易な、遠赤外線炉

、電気炉、ドライヤー、又は湯浴、熱油浴を使用し、少なくとも塗布面に対し、温度勾配が付くように、又は加熱時間に差を持たせるように熱処理を行う。このような不均等加熱を行うことで積算加熱量に応じた着色濃度勾配を持たせることができる。

- 5 そのため、局部加熱が容易な、遠赤外線炉、電気炉、ドライヤー、またはウェット処理による加熱が望ましい。

着色濃度勾配を有する染色ガラスを得る際の冷却方法としては、特に限定されないが、40℃以下のエアを使用するのが実用上好適である。エア冷却は、熱伝導による移染（着色）を抑えること
10 が可能である。

従来法の浸漬染色法に比べて高温で加熱処理するため、染料を基材深部まで浸透させることが可能である。また、浸漬染色法では染色が困難な超高屈折率基材に対しても、良好な染色効果を発揮できる。

- 15 また、上記熱処理を行う際には、染料の外部飛散防止、及び塗料形成面の傷防止を目的として、塗料形成面のさらにその上に熱可塑性樹脂を保護膜としてコーティングしてもよい。

上記保護膜用熱可塑性樹脂としては、耐熱性及び耐溶剤性が良好であり、保護膜とした後、溶解剥離できるものであれば特に制限され
20 れない。具体的にはポリビニルブチラール、ポリビニルアルコール等を好適に使用できる。

上記移染（昇華）のための加熱処理後の基材に付着しているサイズ剤及び上記保護膜は、有機溶剤または水等への浸漬により除去する。使用可能な有機溶剤としては、前記の染料溶解剤に使用したの
25 と同様にS P値8～11の有機溶剤を使用する。

そして、本発明の上記染色方法を用いれば、本発明の各光学要素

を染色可能である。

以下に本発明の各効果をまとめておく。

(1) 本発明の T P E E 系プライマー組成物は、従来の T P U 系プライマーと同等の諸特性（外観、耐擦傷性、密着性、及び、耐衝撃性等）を光学要素に付与できるとともに、基材の耐熱性を低下させることがない。

さらに金属酸化物微粒子を併用すれば、より高屈折率の基材に対する対応が可能となる。

(2) 本発明のハードコート組成物は、上記構成としたことにより、超高屈折レンズに対しても、光干渉を抑えることができる。加えて、紫外線に対する黒化現象を発生することがなく、光学部品を長期使用した場合も美観を損なうことがない。

(3) 本発明の染色用組成物は、非水溶性染料、サイズ剤及び染料溶解剤を特定の組み合わせとすることにより、低濃度から高濃度まで幅広く任意濃度での着色を可能とし、さらにムラのない均一な着色有機ガラスを提供することができる。

そして本発明の染色方法を使用すれば高温で染料を基材へ加熱浸透させるため、従来方法と比較して後工程での色落ちが少ない。そのため従来の染色法では染色が困難な超高屈折率基材に対しても応用することができる。

実験例

以下、本発明の効果を確認するために行った実施例・比較例について、説明をする。以下の説明で、配合単位を示す「部」及び「%」は、特に断らない限り「重量部」及び「wt%」である。

各実験例に使用した、各薬剤及びその代表的物性は下記の通りである。

コロイダルシリカ：「メタノールシリカゾル」日産化学株式会社
製、固形分濃度 30%、粒径 30 nm、溶媒メチルアルコール。

5 レベリング剤「SILWET L-77」：日本ユニカ株式会社
製シリコン界面活性剤。

酸化チタン系複合微粒子：「オプトレイク 1120Z (S-7,
G)」触媒化成工業株式会社製 $ZrO_2 / TiO_2 = 0.02$ 、 $SiO_2 / TiO_2 = 0.22$ 、粒径 10 nm、固
形分濃度 20%、溶媒メチルアルコール、表面改質剤 γ -グ
10 リシドキシプロピルトリメトキシシラン。

酸化チタン系複合微粒子：「オプトレイク 1130Z①」触媒化
成工業株式会社製 $SiO_2 / TiO_2 = 0.2049$ 、 $ZrO_2 / TiO_2 = 0.0198$ 、 $K_2O / TiO_2 = 0.0099$ 、粒径 8 nm、固形分濃度 30%、溶媒メチルアル
15 コール、表面改質剤テトラエトキシシラン。

酸化チタン系複合微粒子：「オプトレイク 1130Z②」触媒化
成工業株式会社製 $SiO_2 / TiO_2 = 0.1986$ 、 $ZrO_2 / TiO_2 = 0.0024$ 、 $K_2O / TiO_2 = 0.0024$ 、粒径 8 nm、固形分濃度 25%、溶媒メチルアル
20 コール、表面改質剤テトラエトキシシラン。

レベリング剤：「SILWET L-7001」日本ユニカ株式
会社製、シリコン系界面活性剤。

酸化チタン系複合微粒子：「オプトレイク 1130F II」触媒化
成工業株式会社製 $SiO_2 / TiO_2 = 0.2351$ 、 $Fe_2O_3 / TiO_2 = 0.0075$ 、粒径 11 nm、固形分
25 濃度 30%、表面改質剤テトラエトキシシラン。

T P E E : 「ペスレジン A - 1 6 0 P」高松油脂株式会社製、水分分散エマルジョン、固形分濃度 2 7 %、粘度 0 . 0 5 P a . s、塗膜表面硬度 4 0 (ショアー D)、ポリエステル・ポリエーテル型。

- 5 コロイダルシリカ : 「オスカル 1 1 2 2 G」触媒化成工業株式会社製、固形分濃度 2 0 %、表面改質剤 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン。

- 10 ポリウレタン : 「スーパーフレックス 1 5 0」第一工業製薬株式会社製、固形分濃度 3 0 %、無機変型、エステル・エーテル型。

アクリルレジン : 「ダイヤナール B R - 8 0」三菱レイヨン株式会社製、 T_g : 1 0 5 $^{\circ}$ C、 M_n : 約 95000

分散染料 : 「スミカロンブルー E - R P D」住友化学工業株式会社製。

- 15 分散染料 : 「スミカロンレッド E - R P D」住友化学工業株式会社製。

分散染料 : 「スミカロンイエロー E - R P D」住友化学工業株式会社製。

- 20 紫外線吸収剤 : 「ユビナール D - 5 0」 : BASF ジャパン社製ベンゾフェノン系。

界面活性剤 : 「レベノール V - 7 0 0」花王株式会社製、炭化水素系。

イオンクリーニング条件

- | | | |
|----|------|-----------|
| 25 | 加圧電圧 | 2 0 0 V |
| | 加速電流 | 1 0 0 m A |
| | 処理時間 | 9 0 秒 |

イオンアシスト条件

加速電圧 600 V

加速電流 200 mA

<実施例 1>

5 (1) プラスチックレンズ

屈折率 1.67 のチオウレタン系プラスチックレンズ（上市品）

(2) ハードコート加工

γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 171 部、テトラ
10 エトキシシラン 28 部、メチルアルコール 100 部を加え、攪拌し
ながら 0.01 N 塩酸 70 部を滴下し、さらに一昼夜攪拌し、加水
分解物を調製した。

該加水分解物に、酸化チタン系複合微粒子「オプトレイク 113
0Z ①」405 部、2-エトキシエタノール 70 部、触媒としてア
15 セチルアセトンアルミニウム（Ⅲ）3 部、及びレベリング剤「SIL
LWET L-7001」0.3 部を加え、一昼夜攪拌し、ハード
コーティング組成物を調製した。

次に、前記 (1) で得られたプラスチックレンズを 40℃ の水酸化
ナトリウム水溶液（濃度 10%）に浸漬させ、純水にて洗浄し、水
20 切りを行った後、前記ハードコート組成物中に浸漬させた。このレ
ンズを 130 mm/min で引き上げて、95℃ で 20 分間の仮硬化後
、110℃ で 4 h 時間の硬化を行い、ハードコート膜を形成した。

(3) 反射防止加工

ハードコート膜を施したレンズを回転するレンズドームにセット
25 し、真空室を 60℃ に加熱しながら圧力 1.33×10^{-3} Pa (1×10^{-5} torr) まで排気し、酸素イオンクリーニングを行った後、基板側か

ら、

	第1層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 26 nm
	第2層	TiO ₂	屈折率 2.37	光学膜厚 34 nm
	第3層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 44 nm
5	第4層	TiO ₂	屈折率 2.37	光学膜厚 116 nm
	第5層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 20 nm
	第6層	TiO ₂	屈折率 2.37	光学膜厚 94 nm
	第7層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 135 nm

の順に蒸着した。また、第2層、第4層、及び第6層のTiO₂は
10、酸素イオンアシスト蒸着を行った。

<実施例2>

ハードコーティング組成物を変更する以外は実施例1と同様に
て行った。

ハードコーティング組成物は、γ-グリシドキシプロピルトリメ
15 トキシシラン205部にメチルアルコール100部を加え、攪拌し
ながら0.01n塩酸45部を滴下し、さらに一昼夜攪拌し、加水
分解物を調製した。

該加水分解物に、前述の酸化チタン系複合微粒子「オプトレイク
1130Z①」405部、ジアセトンアルコール70部、触媒とし
20 てアセチルアセトン鉄(Ⅲ)3部、及びレベリング剤「SILWET
TL-7001」0.1部を加え、一昼夜攪拌し、ハードコーテ
ィング組成物を調製した。

<実施例3>

(1) プラスチックレンズ

25 屈折率1.74のチオエボキシ系プラスチックレンズを得た。

(2) ハードコート加工

γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 136 部、テトラエトキシシラン 10 部、メチルアルコール 60 部を加え。攪拌しながら 0.01 N 塩酸 47 部を滴下し、さらに一昼夜攪拌し、加水分解物を調製した。

- 5 該加水分解物に、酸化チタン系複合微粒子「オプトレイク 1130 Z ②」570 部、2-エトキシエタノール 69 部、触媒としてアセチルアセトンアルミニウム(Ⅲ) 2.2 部、及びレベリング剤「SILWET L-7001」0.3 部を加え、一昼夜攪拌し、ハードコーティング組成物を調製した。

- 10 次に、前記(1)で得られたプラスチックレンズを 40℃の水酸化ナトリウム水溶液(濃度 10%)に浸漬させ、純水にて洗浄し、水切りを行った後、プラズマ処理(酸素ガス、流量 40 cc/min、出力 100 W、処理時間 40 s)を行い、前記ハードコート組成物中に浸漬させた。このレンズを 130 mm/min で引き上げて、95℃
15 で 20 min の仮硬化後、110℃で 4 h の硬化を行い、ハードコート膜を形成した。

(3) 反射防止加工

- ハードコート膜を施したレンズを回転するレンズドームにセットし、真空室を 60℃に加熱しながら圧力 1.33×10^{-3} Pa (1×10^{-5} torr)
20 rr) まで排気し、酸素イオンクリーニングを行った後、基板側から

第 1 層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 26 nm
第 2 層	ZrO ₂	屈折率 2.05	光学膜厚 58 nm
第 3 層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 38 nm
25 第 4 層	TiO ₂	屈折率 2.37	光学膜厚 236 nm
第 5 層	ZrO ₂	屈折率 2.05	光学膜厚 49 nm

第6層 SiO_2 屈折率 1.46 光学膜厚 118 nm
の順に蒸着した。また、第4層の TiO_2 は、酸素イオンアシスト
蒸着を行った。

<実施例4>

5 ハードコーティング組成物、及び反射防止膜構成を変更する以外
は実施例3と同様にして行った。

ハードコーティング組成物は、 γ -グリシドキシプロピルトリメ
トキシシラン149部にメチルアルコール60部を加え攪拌しながら
0.01N塩酸40部を滴下し、さらに一昼夜攪拌し、加水分解
10 物を調製した。

該加水分解物に、酸化チタン系複合微粒子「オプトレイク113
0Z②」570部、ジアセトンアルコール69部、触媒としてアセ
チルアセトン鉄(III)3部、及びレベリング剤「SILWET L
-7001」0.3部を加え、一昼夜攪拌し、ハードコーティング
15 組成物を調製した。

反射防止膜は、

ハードコート膜を施したレンズを回転するレンズドームにセット
し、真空室を60℃に加熱しながら圧力 $1.33 \times 10^{-3} \text{Pa}$ ($1 \times 10^{-5} \text{torr}$)
まで排気し、酸素イオンクリーニングを行った後、基板側から
20 、

第1層	SiO_2	屈折率 1.46	光学膜厚 26 nm
第2層	TiO_2	屈折率 2.37	光学膜厚 40 nm
第3層	SiO_2	屈折率 1.46	光学膜厚 46 nm
第4層	TiO_2	屈折率 2.37	光学膜厚 121 nm
25 第5層	SiO_2	屈折率 1.46	光学膜厚 21 nm
第6層	TiO_2	屈折率 2.37	光学膜厚 90 nm

第7層 SiO_2 屈折率 1.46 光学膜厚 137 nm
の順に蒸着した。また、第2層、第4層、及び第6層の TiO_2 は、酸素イオンアシスト蒸着を行った。得られた分光反射率特性を第1図に示す。

5 <比較例 1>

ハードコーティング組成物を変更する以外は実施例1と同様にして行った。

ハードコーティング組成物は、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン182部、テトラエトキシシラン60部、メチルアルコール280部を加え、攪拌しながら0.01N塩酸47部を滴下し、さらに一昼夜攪拌し、加水分解物を調製した。

該加水分解物に、酸化チタン系複合微粒子「オプトレイク1130FII」460部、触媒としてイタコン酸20部、ジシアンアミド6部、及びレベリング剤「SILWET L-7001」0.3部
15 を加え、一昼夜攪拌し、ハードコーティング組成物を調製した。

<比較例 2>

反射防止膜を変更する以外は実施例2と同様にして行った。

反射防止膜は、

ハードコート膜を施したレンズを回転するレンズドームにセット
20 し、真空室を60℃に加熱しながら圧力 $1.33 \times 10^{-3} \text{Pa}$ ($1 \times 10^{-5} \text{ torr}$) まで排気し、酸素イオンクリーニングを行った後、

基板側から、

第1層	SiO_2	屈折率 1.46	光学膜厚 26 nm
第2層	TiO_2	屈折率 2.25	光学膜厚 34 nm
25 第3層	SiO_2	屈折率 1.46	光学膜厚 48 nm
第4層	TiO_2	屈折率 2.25	光学膜厚 268 nm

第5層 SiO_2 屈折率 1.46 光学膜厚 127 nm
の順に蒸着した。

<比較例 3>

ハードコーティング組成物を変更する以外は実施例 3 と同様にし
5 て行った。

γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 182 部、テトラ
エトキシシラン 60 部、メチルアルコール 150 部を加え、攪拌し
ながら 0.01 N 塩酸 47 部を滴下し、さらに一昼夜攪拌し、加水
分解物を調製した。

10 該加水分解物に、酸化チタン系複合微粒子「オプトレイク 113
OF II」610 部、触媒としてイタコン酸 20 部、ジシアンアミド
6 部、及びレベリング剤「SILWET L-7001」0.3 部
を加え、一昼夜攪拌し、ハードコーティング組成物を調製した。

<比較例 4>

15 反射防止膜を変更する以外は実施例 4 と同様にして行った。

反射防止膜は、

ハードコート膜を施したレンズを回転するレンズドームにセット
し、真空室を 60℃ に加熱しながら圧力 $1.33 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ (1×10^{-5}
torr) まで排気し、酸素イオンクリーニングを行った後、基板側か

20 ら、

第1層 SiO_2 屈折率 1.46 光学膜厚 26 nm

第2層 TiO_2 屈折率 2.37 光学膜厚 33 nm

第3層 SiO_2 屈折率 1.46 光学膜厚 47 nm

第4層 TiO_2 屈折率 2.37 光学膜厚 265 nm

25 第5層 SiO_2 屈折率 1.46 光学膜厚 125 nm

の順に蒸着した。また、第2層、及び第4層の TiO_2 は酸素イオ

ンアシスト蒸着を行った。得られた分光反射率特性を第2図に示す。

<実施例5>

(1) プラスチックレンズの作成

5 ジエチレングリコールビスアリルカーボネート100部に重合開始剤ジイソプロピルパーオキシカーボネート3部を混ぜ合わせ、0.8 μ mメンブランフィルターにて濾過を行い、濾液をガラス製鋳型中に注入した。次に40℃で3h、40℃～65℃までを12h、65℃～85℃までを6hかけて昇温し、最後に85℃にて3hの
10 加熱を行った後、レンズを鋳型より取り出し、さらに130℃にて2hのアニーリング（annealing:歪み除去）を行い、屈折率1.50のプラスチックレンズを得た。

(2) プライマー加工

市販のTPEE「ペスレジンA-160P」100部に、コロイ
15 ダルシリカ「オスカル1122G」105部、希釈溶剤としてメチルアルコール350部、レベリング剤として「SILWET L-77」1部を混合し、均一な状態になるまで攪拌し、これをプライマー塗料とした。

次に、前記(1)で得られたプラスチックレンズを40℃の水酸化
20 ナトリウム水溶液（濃度10%）に浸漬させ、純水にて洗浄し、水切りを行った後、前記プライマー塗料中に浸漬させた。このレンズを160mm/minで引き上げて110℃で20minの条件で硬化させた。

(3) ハードコート加工

25 ギャーグリシドキシプロピルトリメトキシシラン109部、テトラエトキシシラン40部、ギャーグリシドキシプロピルメチルジメトキ

シシラン 27 部にメチルアルコール 97 部を加え、攪拌しながら 0.01 N の塩酸 38 部を滴下し、さらに一昼夜の攪拌を行い、加水分解物を調製した。

該加水分解物にコロイダルシリカ「メタノールシリカゾル」390 部、純水 290 部、触媒としてアセチルアセトン鉄 1.5 部、及びレベリング剤「SILWET L-77」3.0 部を加え、一昼夜攪拌し、ハードコーティング組成物を調製した。

次に前記(2)で加工されたプライマー加工レンズを前記ハードコーティング組成物中に浸漬させた後、105 mm/min で引き上げて、95℃で20 min の仮硬化を経て、100℃で2 h の硬化を行い、ハードコート膜を形成した。

(4) 反射防止加工

ハードコート膜を施したレンズを回転するレンズドームにセットし、真空室を60℃に加熱しながら圧力 1.33×10^{-3} Pa (1×10^{-5} torr) まで排気し、酸素イオンクリーニングを行った後、基板側から

第1層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 26 nm
第2層	ZrO ₂	屈折率 2.05	光学膜厚 70 nm
第3層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 27 nm
第4層	ZrO ₂	屈折率 2.05	光学膜厚 135 nm
第5層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚 135 nm

の順に蒸着した。

<実施例 6>

(1) プラスチックレンズ

屈折率 1.60 のチオウレタン系プラスチックレンズ。

(2) プライマー加工

コロイダルシリカ 105 部を酸化チタン系複合微粒子「オプトレイク 1120Z (S-7, G)」57 部に、希釈剤であるメチルアルコールを 640 部に変更する以外は実施例 5 と同様にして行った。

5 (3) ハードコート加工

γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン 182 部、テトラエトキシシラン 65 部に、メチルアルコール 90 部を加え、攪拌しながら 0.01 N の塩酸 52 部を滴下し、さらに一昼夜の攪拌を行い、加水分解物を調製した。

10 該加水分解物に酸化チタン複合微粒子「オプトレイク 1130F II」250 部、純水 70 部、触媒としてアセチルアセトン鉄 1.5 部、及びレベリング剤「SILWET L-77」3.0 部を加え、一昼夜攪拌し、ハードコーティング組成物を調製した。

次に、前記 (2) で加工されたプライマー加工レンズを前記ハード
15 コーティング組成物中に浸漬させた後、105 mm/min で引き上げて、95℃で20分の仮硬化後、100℃で2hの硬化を行い、ハードコート膜を形成した。

(4) 反射防止膜

ハードコート膜を施したレンズを回転するレンズドームにセット
20 し、真空室を 60℃に加熱しながら圧力 $1.33 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ ($1 \times 10^{-5} \text{ torr}$) まで排気し、酸素イオンクリーニングを行った。

その後、基材側から、

第 1 層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚	26 nm
第 2 層	ZrO ₂	屈折率 2.05	光学膜厚	83 nm
25 第 3 層	SiO ₂	屈折率 1.46	光学膜厚	21 nm
第 4 層	ZrO ₂	屈折率 2.05	光学膜厚	135 nm

第5層 SiO_2 屈折率 1.46 光学膜厚 135 nm
の順に蒸着した。

<実施例 7>

プライマー加工を施す以外は実施例 1 と同様に行った。

5 (1) プライマー加工

酸化チタン系複合微粒子を変更する以外は実施例 6 と同様にして
行った。酸化チタン系複合微粒子は「オプトレイク 1130Z ①」
85 部に変更した。

<実施例 8>

10 プライマー加工を施す以外は実施例 3 と同様にして行った。

(1) プライマー加工

酸化チタン系複合微粒子の添加量を 180 部に、希釈剤であるメ
チルアルコールを 350 部に変更する以外は実施例 7 と同様にして
行った。

15 <比較例 5>

プライマー塗料を変更する以外は実施例 5 と同様にして行った。

プライマー塗料は、市販の水性エマルションポリウレタン「スー
パーフレックス 150」100 部にコロイダルシリカ「オスカル 1
122G」105 部、来借財としてメチルアルコール 350 部、レ
20 ベリング剤として「SILWET L-77」1 部を混合し、均一
な状態になるまで攪拌し、プライマー塗料とした。

<比較例 6>

プライマー塗料を変更する以外は実施例 6 と同様にして行った。

プライマー塗料は、コロイダルシリカ 105 部を酸化チタン系複合
25 微粒子「オプトレイク 1120Z (S-7, G)」82.5 部に、
希釈剤であるメチルアルコールを 640 部に変更する以外は比較例

5と同様にして作成した。

<比較例7>

プライマー塗料を変更する以外は実施例7と同様にして行った。

プライマー塗料は、酸化チタン系複合微粒子を変更する以外は比較例6と同様にして作成した。酸化チタン系複合微粒子は、「オプトレイク1130Z①」125部に変更した。

<比較例8>

プライマー塗料を変更する以外は実施例8と同様にして行った。

酸化チタン系複合微粒子の添加量を203部に、メチルアルコールを350部に変更する以外は比較例7と同様にして作成した。

<実施例9>

(1) プラスチックレンズ

実施例5と同様にして製造したプラスチックレンズ。

(2) 染色用組成物の調製

市販のアクリルレジジン「ダイヤナールBR-80」3.2部をトルエン12.8部に溶解させた後、メチルエチルケトン12部、ジオキサン12部、レベリング剤として「SILWET L-7001」0.01部を混合し、均一な状態になるまで攪拌し、組成物を調製した。

該組成物に、青色分散染料「スミカロンブルーE-RPD」6部、赤色分散染料「スミカロンレッドE-RPD」4部、及び黄色分散染料「スミカロンイエローE-RPD」2部を加え、60min攪拌した後、3μフィルターにて濾過を行い、染色用組成物を調製した。

(3) 保護膜用塗料の調製

次に、ポリビニルアルコール（重合度約2,000）15部に純

水85部を加え、均一な状態になるまで攪拌し、保護膜用塗料を調製した。

(4) 染色レンズの作成

次に、エチルアルコールを浸した布でレンズを拭き上げ、該レンズの凸面にスピコート法（ステップ1：300rpm×15s、ステップ2：1,000rpm×15s）により前記染色用組成物を塗布し、風乾後、同条件にて保護膜用塗料を塗布した。

このレンズをエアーオーブンにて130℃で30minの加熱を行った後、水に1min、次いでアセトンに1min浸漬させ、染色レンズを得た。

(5) ハードコート加工

さらにこのレンズを40℃の水酸化ナトリウム水溶液（濃度10%）に浸漬させ、純水にて洗浄し、水切りを行った後、実施例5に使用したハードコート組成物中に浸漬させ、105mm/minで引き上げて、95℃で20minの仮硬化を得て、100℃で2hの硬化を行い、染色レンズハードコート加工品を得た。

<実施例10>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例1と同じチオウレタン系プラスチックレンズ（上市品）

(2) 染色用組成物の調製

実施例9と同様に染色用組成物を調製した。

(3) 保護膜用塗料の調製

実施例9と同様に保護膜用塗料を調製した。

(4) 染色レンズの作成

実施例9と同様に染色レンズを製造した。

(5) ハードコート加工

実施例 1 のハードコート加工と同様にして行った。

<実施例 1 1>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 3 と同じプラスチックレンズ。

5 (2) 染色用組成物の調製

実施例 9 と同様に染色用組成物を調製した。

(3) 保護膜用塗料の調製

実施例 9 と同様に保護膜用塗料を調製した。

(4) 染色レンズ作成

10 エアオーブンでの加熱処理条件の変更以外は実施例 9 と同様にして行った。エアオーブンの加熱処理条件は $130^{\circ}\text{C} \times 60\text{min}$ に変更した。

(5) ハードコート加工

実施例 3 のハードコート加工と同様にして行った。

15 <実施例 1 2>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 5 と同様にして製造したプラスチックレンズ。

(2) ハードコート加工

次に、このレンズを 40°C の水酸化ナトリウム水溶液（濃度 10
20 %）に浸漬させ、純水にて洗浄し、水切りを行った後、実施例 5 に使用したハードコート組成物中に浸漬させ、 $105\text{mm}/\text{min}$ で引き上げて、 95°C で 20 分の仮硬化を経て、 $100^{\circ}\text{C} \times 2\text{h}$ で硬化を行い、ハードコート加工を行った。

(3) 染色用組成物の調製

25 実施例 9 と同様に染色用組成物を調製した。

(4) 保護膜用塗料

実施例 9 と同様に保護膜用塗料を調製した。

(5) ハードコート加工レンズの染色

ハードコート加工レンズをエチルアルコールを浸した布で拭き上げ、該レンズの凸面にスピンコート法（ステップ 1：300rpm ×
5 15s、ステップ 2：1,000rpm × 15s）により前記染色用組成物を塗布し、風乾後、同条件にて保護用塗料を塗布した。このレンズをエアオーブンにて 130℃ × 30min の加熱処理を行った後、水に 1min、次いでアセトンに 1min 浸漬させ、染色レンズを得た。

10 <実施例 13>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 5 と同じプラスチックレンズ。

(2) 染色用組成物の調製

市販のアクリルレジン「ダイナール BR-80」3.84部を
15 トルエン 15.36部に溶解させた後、メチルエチルケトン 14.4部、ジオキサン 14.39部、レベリング剤として「SILWET L-7001」0.01部を混合し、均一な状態になるまで攪拌して組成物を調製した。

該組成物に、紫外線吸収剤「ユビナール D-50」2部（他の非
20 水溶性染料は含まれていない）を加え、60min 攪拌した後、3μフィルターにて濾過を行い、染色用組成物を調製した。

(3) 保護膜用塗料の調製

実施例 9 と同様に、保護膜用塗料を調製した。

(4) 染色レンズの作成

25 実施例 9 と同様にして、染色レンズを作成した。

(5) ハードコート加工

実施例 9 と同様にハードコート加工を行った。

<実施例 14>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 1 と同じプラスチックレンズ。

5 (2) 染色用組成物の調製

実施例 9 と同様に染色用組成物を調製した。

(3) 保護膜用塗料の調製

実施例 9 と同様に、保護膜用塗料を調製した。

(4) 濃度勾配（ハーフ）染色レンズの作成

- 10 次に、エチルアルコールを浸した布でレンズを拭き上げ、該レンズの凸面にスピコート法（ステップ 1：300rpm×15秒、ステップ 2：1,000rpm×15秒）により前記染色用組成物を塗布し、風乾後、同条件にて保護膜用塗料を塗布した。

- このレンズを固定し、凸面上部、約10cmの距離からヒーティングガンにて熱風をレンズに吹きつけた。この際、ヒーティングガン
15 を上下に揺動させながら下方にずらし、尚かつ、熱風が当たっていない部分には室温（23℃）の風を当てた。この動作を繰り返し3min 行った。（表面最高温度180℃）

- 次にこのレンズを水に1分間、次いでアセトンに1分間浸漬させ
20 、濃度勾配のついた染色レンズを得た。この濃度勾配レンズは、レンズ固定時に下方であった部分が最も着色されており、上方になるにつれ着色が薄れていた。

(5) ハードコート加工

実施例 1 と同様にハードコート加工を行った。

25 <実施例 15>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 3 と同じプラスチックレンズ。

(2) 染色用組成物の調製

実施例 9 と同様に染色用組成物を調製した。

(3) 保護膜用塗料の調製

5 実施例 9 と同様に、保護膜用塗料を調製した。

(4) 濃度勾配染色レンズの作成

加熱時間を 5 min に変更する以外には実施例 1 4 と同様にして行った。

(5) ハードコート加工

10 実施例 3 と同様にハードコート加工を行った。

<比較例 9>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 5 と同じプラスチックレンズ。

(2) 染色用組成物の調合

15 水 1, 0 0 0 部に「スミカロンブルー E-RPD」2 部、「スミカロンレッド E-RPD」1 部、「スミカロンイエロー E-RPD」1 部、及び界面活性剤として「レベノール V-700」3 部を加え、攪拌した後、90℃まで加熱して、染色用組成物を調製した。

(3) 染色レンズの作成

20 次にエチルアルコールを浸した布にてレンズを拭きあげ、前記染色用組成物に 30 min 浸漬させ、染色レンズを得た。

(4) ハードコート加工

実施例 9 と同様にハードコート加工を行った。

<比較例 10>

25 (1) プラスチックレンズの作成

実施例 1 と同様にプラスチックレンズを作成した。

(2) 染色用組成物の調合

比較例 9 と同様に染色用組成物を調合した。

(3) 染色レンズの作成

比較例 3 と同様に、染色レンズを作成した。

5 (4) ハードコート加工

実施例 1 と同様にハードコート加工を行った。

< 比較例 1 1 >

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 3 と同様にプラスチックレンズを作成した。

10 (2) 染色用組成物の調合

比較例 9 と同様に染色用組成物を調合した。

(3) 染色レンズの作成

染色用組成物への浸漬時間を変更する以外は比較例 9 と同様にし
て行った。浸漬時間は 1 2 0 min に変更した。

15 (4) ハードコート加工

実施例 3 と同様にハードコート加工を行った。

< 比較例 1 2 >

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 5 と同様にプラスチックレンズを作成した。

20 (2) ハードコート加工

実施例 1 2 と同様にハードコート加工を行った。

(3) 染色用組成物の調合

比較例 9 と同様に染色用組成物の調合を行った。

(4) 染色レンズの作成

25 次にエチルアルコールを浸した布にてハードコート加工レンズを
拭きあげ、前記染色用組成物に 3 0 min 浸漬させ、染色レンズを得

た。

<比較例 1 3>

(1) プラスチックレンズの作成

実施例 5 と同様にプラスチックレンズを作成した。

5 (2) 染色用組成物の調合

水 1, 0 0 0 部に紫外線吸収剤「ユビナール D - 5 0」2 部、及び界面活性剤として「レベノール V - 7 0 0」3 部を加え、攪拌した後、9 0 °C まで加熱し、染色用組成物を調製した。

(3) 染色レンズの作成

10 比較例 1 0 と同様に染色レンズを作成した。

(4) ハードコート加工

実施例 9 と同様にハードコート加工を行った。

<比較例 1 4>

(1) プラスチックレンズの作成

15 実施例 1 と同じプラスチックレンズ。

(2) 染色用組成物の調合

比較例 9 と同様に、染色用組成物を調合した。

(3) 染色レンズの作成

次にエチルアルコールを浸した布にてレンズを拭きあげ、市販の
20 ハーフ染色機（日本光学工業（株）製ニコンハーフ染色装置）にて前記染色用組成物に 1 0 min 浸漬させ、染色レンズを得た。

(4) ハードコート加工

実施例 1 と同様にハードコート加工を行った。

<比較例 1 5>

25 (1) プラスチックレンズの作成

実施例 3 と同じプラスチックレンズ。

(2) 染色用組成物の調合

比較例 9 と同様に、染色用組成物を調合した。

(3) 染色レンズの作成

染色用組成物への浸漬時間を変更する以外は比較例 1 4 と同様に
5 して行った。浸漬時間は 6 0 min に変更した。

<評価項目>

(1) 干渉縞

蛍光灯「商品名：メロウ 5 N」（東芝ライテック株式会社製、三
波長型昼白色蛍光灯）の光を試験片の表面で反射させ、対象物表面
10 にできる光干渉色（虹模様）の程度により判定した。

(2) 密着性

試験片に 1 c m 四方に 1 m m 間隔で 1 0 0 個のマス目を形成し、
セロハン製粘着テープを強く押しつけた後、9 0 ° 方向に急激に剥
がし、1 0 回行った後、剥離しないマス目の数を数えた。

15 (3) 耐擦傷性

スチールウール（＃ 0 0 0 0 ）に（0.6 kgf）の荷重を加え、各
試験片の表面を 3 0 回／1 5 秒にて擦り、傷の入り具合にて判定し
た。

3 A：傷の面積が 0 %

20 2 A：傷の面積が 1 % を越え 2 % 未満

A：傷の面積が 3 % を越え 1 0 % 未満

A B：傷の面積が 1 0 % を越え 3 0 % 未満

B：傷の面積が 3 0 % を越え 6 0 % 未満

C：傷の面積が 6 0 % 以上

25 D：傷の面積が全面

(4) 耐温水性

80℃の湯中に試験片を10分間浸漬させ、外観（クラックの有無）と密着性試験（前述）を行った。

(5) 耐熱性

「パーフェクトオープン」（タバイエスベック株式会社製商品名5）を用いて、各試験片を5minの加熱を行い、30min室温放置後のクラック濃霧にて判定を行った。

試験温度は、60℃より開始し、10℃毎で昇温させ、クラックの確認されない最高温度を耐熱温度とした。

(6) 耐候性

10 促進耐候性試験（スガ試験機株式会社製「サンシャインスーパーロングライフウェザストリップメーカー」）で200時間暴露して、外観（表面状態）及び密着性試験（前述）を行った。

(7) 反射防止域測定、視感度反射率測定

15 反射率測定器（オリンパス光学工業（株）「USP-II」）を行い測定を行った。

(8) 視感度透過率測定

視感度透過率計（富士光電株式会社製「STS-2」）を用い測定を行った。

(9) 紫外線照射後の視感度透過率測定

20 褪色試験用水銀ランプ（東芝ライテック株式会社製「H400-F」）を発光させ、ランプに対し約20cmの距離に試験片を50時間暴露した後の視感度透過率（前述）測定を行った。

(10) 耐衝撃性

25 鋼球（33g）を127cmの高さから試験片の中心部に落下させ、割れるか否かで判定した。

(11) 400nm透過率

分光光度計（島津製作所製「UV-1200」）にて400nmの透過率を測定した。

第 1 表

5		レンズ	ハード膜	反射防止膜
	実施例 1	1.67	金属微粒子① 硬化剤アセチルアセトンアルミニウム	イオンクリーニング 有り アシスト蒸着 有り 等価膜構成 中、高屈折
	実施例 2	1.67	金属微粒子① 硬化剤アセチルアセトン鉄	実施例 1 と同じ
	実施例 3	1.74	金属微粒子② 硬化剤アセチルアセトンアルミニウム	イオンクリーニング 有り アシスト蒸着 有り 等価膜構成 中、高屈折
	実施例 4	1.74	金属微粒子② 硬化剤アセチルアセトン鉄	イオンクリーニング 有り アシスト蒸着 有り 等価膜構成 中、高屈折
10	比較例 1	1.67	金属微粒子③ 硬化剤イタコン酸 及びジシアンジアミド	実施例 1 と同じ
	比較例 2	1.67	実施例 2 と同じ	イオンクリーニング 有り アシスト蒸着 無し 等価膜構成 中屈折
	比較例 3	1.74	金属微粒子③ 硬化剤イタコン酸 及びジシアンジアミド	実施例 3 と同じ
	比較例 4	1.74	実施例 4 と同じ	イオンクリーニング 有り アシスト蒸着 無し 等価膜構成 中屈折

15 金属微粒子①：「オブトレイク1130Z①」
 金属微粒子②：「オブトレイク1130Z②」
 金属微粒子③：「オブトレイク1130FⅡ」

第 2 表

	レンズ	プライマー	ハード膜	反射防止膜
実施例 5	1.50	ポリエステル系 T P E	コロイダルシリカ 硬化剤アセチルアセトン鉄	イオンクリーニング アシスト蒸着 等価膜構成 有り 無し 高屈折
実施例 6	1.60	ポリエステル系 T P E	金属微粒子③ 硬化剤アセチルアセトン鉄	イオンクリーニング アシスト蒸着 等価膜構成 有り 無し 高屈折
実施例 7	1.67	ポリエステル系 T P E	実施例 1 と同じ	
実施例 8	1.74	ポリエステル系 T P E	実施例 3 と同じ	
比較例 5	1.50	ポリウレタン系 T P U	実施例 5 と同じ	
比較例 6	1.60	ポリウレタン系 T P U	実施例 6 と同じ	
比較例 7	1.67	ポリウレタン系 T P U	実施例 7 と同じ (実施例 1 と同じ)	
比較例 8	1.74	ポリウレタン系 T P U	実施例 8 と同じ (実施例 3 と同じ)	

金属微粒子③：「オプトレイク 1130F II」

第 3 表

	レンズ	染色	ハード膜
実施例 9	1.50	昇華型染色	実施例 5 と同じ
実施例 10	1.67	昇華型染色	実施例 1 と同じ
実施例 11	1.74	昇華型染色	実施例 3 と同じ
実施例 12	1.50	昇華型染色 ハード膜形成後着色	実施例 5 と同じ
実施例 13	1.50	昇華型染色 紫外線吸収剤	実施例 5 と同じ
実施例 14	1.67	昇華型染色 濃度勾配付き	実施例 1 と同じ
実施例 15	1.74	昇華型染色 濃度勾配付き	実施例 3 と同じ
比較例 9	1.50	浸染方法	実施例 9 と同じ
比較例 10	1.67	浸染方法	実施例 10 と同じ
比較例 11	1.74	浸染方法	実施例 11 と同じ
比較例 12	1.50	浸染方法 ハード膜形成後着色	実施例 12 と同じ
比較例 13	1.50	浸染方法 紫外線吸収剤	実施例 13 と同じ
比較例 14	1.67	浸染方法 濃度勾配付き	実施例 14 と同じ
比較例 15	1.74	浸染方法 濃度勾配付き	実施例 15 と同じ

第 4 表

試験片 No.	1	2	3	4	5	6
試験片構成	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	比較例 5	比較例 6
干渉縞	良好	良好	良好	良好	良好	良好
密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
耐擦傷性	A	A B	A	A	A	A B
耐温水性 外観	良好	良好	良好	良好	良好	良好
耐温水密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
耐熱性	70℃	90℃	90℃	100℃	60℃	80℃
耐衝撃性	割れない	割れない	割れない	割れない	割れない	割れない

試験片 No.	7	8	9	10	11	12
試験片構成	比較例 7	比較例 8	実施例 5 の フライ-膜無し	実施例 6 の フライ-膜無し	実施例 7 の フライ-膜無し (実施例 1)	実施例 8 の フライ-膜無し (実施例 3)
干渉縞	良好	良好	良好	良好	良好	良好
密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
耐擦傷性	A	A	A	A B	A	A
耐温水性 外観	良好	良好	良好	良好	良好	良好
耐温水密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
耐熱性	80℃	90℃	70℃	90℃	90℃	100℃
耐衝撃性	割れない	割れない	割れた	割れた	割れた	割れた

比較例 1 は、ハードコートでの耐擦傷性に劣り、また、反射防止加工品の紫外線照射による視感度透過率の低下が著しい。これは、ハードコートに含まれる酸化チタン系複合微粒子に起因するものと思われる。

- 5 比較例 2 は、反射防止加工品の耐擦傷性及び耐熱性が低い。これは、反射防止膜の成膜条件の違いによるものである。

比較例 3 は、干渉縞が若干認められ、また、比較例 1 と同様に反射防止加工品の紫外線照射による視感度透過率が著しい。

- 比較例 4 は、耐久性能としては良好だが、可視光域での反射防止
10 帯域が実施例と比べ狭かった（第 1 図及び第 2 図参照）。

実施例 1 ～ 4 は、全ての項目において良好であった。

第 5 表

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
干涉縞	良好	良好	良好	良好	良好	良好	若干有り	良好
密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
耐擦傷性	A ~ A B	A ~ A B	A ~ A B	A ~ A B	A B	A ~ A B	A ~ A B	A ~ A B
耐温水性 外觀	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好
耐温水密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
干涉縞	良好	良好	良好	良好	良好	良好	若干有り	良好
密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
耐擦傷性	A	A	A	A	A B	A B	A	A
耐温水性 外觀	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好
耐温水密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
耐熱性	90℃	90℃	100℃	100℃	90℃	80℃	100℃	100℃
耐候性 外觀	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好
耐候密着性	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100	100/100
反射防止域	広域	広域	広域	広域	広域	広域	広域	やや広域
視感度反射率	0.35 %	0.35 %	0.34 %	0.35 %	0.35 %	0.32 %	0.32 %	0.35 %
視感度透過率	99.0 %	99.0 %	98.7 %	98.6 %	99.0 %	99.1 %	98.6 %	98.6 %
紫外線照射後 視感度透過率	97.8 %	97.8 %	97.3 %	97.6 %	94.8 %	97.9 %	93.3 %	97.4 %

5

10

15

20

25

実施例 5 ～ 8 の T P E E 系プライマーを用いた試験片 N o . 1 ～ 4 は、それに対応する比較例 5 ～ 8 の T P U 系プライマーを用いた試験片 N o . 5 ～ 8 と同様に外観が良好で、密着性、耐擦傷性、耐温水性及び耐衝撃性に優れているとともに、プライマー無塗布の試験片 N o . 9 ～ 1 2 と同等の耐熱性を有している。すなわち、比較例 5 ～ 8 の T P U 系プライマーを用いた試験片 N o . 5 ～ 8 に比して耐熱性が優れている。

第 6 表

	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12	実施例 13	実施例 14	実施例 15
染色処理時間	30分	30分	60分	30分	30分	3分	5分
着色視感度透過率	8.5 %	15.2 %	58.2 %	23.1 %	—	6.1 %	28.3 %
濃度400nm透過率	—	—	—	—	15.8 %	—	—
H D 後視感度透過率	9.7 %	15.9 %	58.7 %	—	16.2 %	6.4 %	28.6 %

	比較例 9	比較例 10	比較例 11	比較例 12	比較例 13	比較例 14	比較例 15
染色処理時間	30分	30分	120分	30分	30分	10分	60分
着色視感度透過率	23.8 %	20.1 %	83.1 %	45.8 %	—	49.4 %	79.7 %
濃度400nm透過率	—	—	—	—	52.3 %	—	—
H D 後視感度透過率	28.1 %	26.4 %	83.8 %	—	54.1 %	56.8 %	80.9 %

昇華性染色での実施例 9 ～ 1 5 は、それに対応する従来染色での比較例 9 ～ 1 5 に比較して、短時間で高濃度まで着色でき、また、後加工（H D）での堅牢度も良好であった。

請求の範囲

1. 有機ガラス基材とシリコン系硬化塗膜との間にプライマー層を形成するためのプライマー組成物において、

5 プライマー層形成ポリマーの全部又は主体がポリエステル系熱可塑性エラストマー（以下「エステル系 T P E」という。）であることを特徴とするプライマー組成物。

2. 有機ガラス基材とシリコン系硬化塗膜との間にプライマー層を形成するためのプライマー組成物において、

10 プライマー層形成ポリマーの全部又は主体がエステル系 T P E であり、

金属酸化物微粒子を光学的干渉制御剤として含有することを特徴とするプライマー組成物。

3. 前記エステル系 T P E のハードセグメントとソフトセグメントとのモル比率が、前者／後者 = 30 / 70 ~ 90 / 10 であり、

前記エステル系 T P E が、表面硬度（ショア D）：35 ~ 75、曲げ弾性率：40 ~ 800 MPa を示すものであることを特徴とする請求項 2 記載のプライマー組成物。

4. 前記エステル系 T P E のハードセグメントとソフトセグメントとのモル比率が、前者／後者 = 30 / 70 ~ 90 / 10 であって、前記エステル系 T P E が、表面硬度（ショア D）：35 ~ 75、曲げ弾性率：40 ~ 800 MPa を示すものであることを特徴とする請求項 1 記載のプライマー組成物。

5. 有機ガラス基材の表面に、シリコン系硬化塗膜からなるハードコート層が形成されてなる光学要素において、前記有機ガラス基材とシリコン系硬化塗膜との間に、

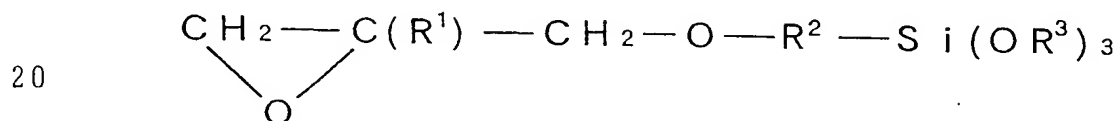
請求項 1、2、3 または 4 記載のプライマー組成物で形成されてなるプライマー層が介在されていることを特徴とする光学要素。

6. 前記シリコン系硬化塗膜を形成するためのハードコート組成物が、モノエポキシ有機基含有トリアルコキシシランを主体とするアルコキシシランの加水分解物をマトリックス形成成分として、チタニア系酸化金属複合微粒子を光学的干渉制御剤とするものであり、

前記チタニア系酸化金属複合微粒子が、 TiO_2 を主体とし SiO_2 を主副成分とし、更に、 ZrO_2 及び K_2O を微量副成分とするものであることを特徴とするハードコート組成物。

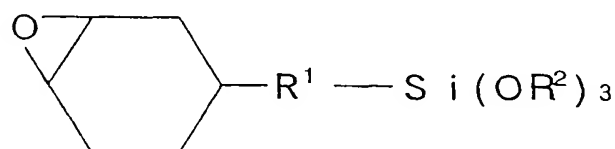
7. 前記チタニア系酸化金属複合微粒子が、平均粒径を $1 \sim 50 \text{ nm}$ とし、組成を $\text{SiO}_2 / \text{TiO}_2 = 0.1900 \sim 0.2100$ 、 $\text{ZrO}_2 / \text{TiO}_2 = 0.0015 \sim 0.023$ 、 $\text{K}_2\text{O} / \text{TiO}_2 = 0.0012 \sim 0.012$ の各重量比率を満足するものとし、含量を全アルコキシシラン 100 重量部に対して $40 \sim 100$ 重量部であることを特徴とする請求項 6 記載のハードコート組成物。

8. 前記モノエポキシ有機基含有トリアルコキシシランが、一般式①



(ただし、 R^1 は H または CH_3 、 R^2 は炭素数 $1 \sim 4$ のアルキレン基、 R^3 は炭素数 $1 \sim 4$ のアルキル基) で表される、又は、

一般式②



5 (ただし R^1 は炭素数 1 ～ 4 のアルキレン基、 R^2 は炭素数 1 ～ 4 のアルキル基) で示される

群から選択される 1 種又は 2 種以上からなることを特徴とする請求項 7 記載のハードコート組成物。

9. 前記モノエポキシ有機基含有トリアルコキシシラン以外の
10 アルコキシシランが、

一般式③ $\text{Si}(\text{OR}^1)_4$

(ただし、 R^1 は炭素数 1 ～ 4 のアルキル基)

で示されるテトラアルコキシシランであり、該テトラアルコキシ
シランの含有量が前記アルコキシシラン全量中 20 wt% 以下である
15 ことを特徴とする請求項 8 記載のハードコート組成物。

10. マトリックス形成成分の硬化剤として有機金属化合物を
含有し、該有機金属化合物が、エチレンジアミン四酢酸、ヘキサフ
ルオロアセチルアセトン、トリフルオロアセチルアセトン、アセチ
ルアセトン、アセト酢酸メチルから選ばれるキレート化剤が配位し
20 た $\text{Cr}(\text{III})$ 、 $\text{Co}(\text{III})$ 、 $\text{Fe}(\text{III})$ 、 $\text{Zn}(\text{II})$ 、 In
(III)、 $\text{Zr}(\text{IV})$ 、 $\text{Y}(\text{III})$ 、 Sn 、 V 、 $\text{Al}(\text{III})$ 、 Ti
(II) のキレート化合物の群から選択される 1 種又は 2 種以上か
らなることを特徴とする請求項 9 記載のハードコート組成物。

11. 請求項 5、6、7、8 又は 9 記載のハードコート組成物
25 で形成されてなるハードコート層を、有機ガラス基材上に備えてい
ることを特徴とする光学要素。

1 2 . 有機ガラス基材の表面に、プライマー層を介してハードコート層が形成されてなる光学要素において、

プライマー層を形成するプライマー組成物が、プライマー層形成ポリマーの全部又は主体をエステル系 T P E とするものであり；

5 前記ハードコート層を形成するハードコート組成物が、

モノエボキシ有機基含有トリアルコキシシランを主体とするアルコキシシランの加水分解物をマトリックス形成成分として、チタニア系酸化金属複合微粒子を光学的干渉制御剤とし、

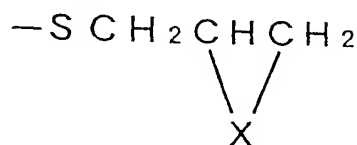
前記チタニア系酸化金属複合微粒子が、 TiO_2 を主体とし SiO_2 を主副成分とし、更に、 ZrO_2 及び K_2O を微量副成分とするものである、

ことを特徴とすることを特徴とする光学要素。

1 3 . 前記プライマー組成物が、さらに金属酸化物微粒子を光学的干渉制御剤として含有するものであることを特徴とする請求項
15 1 2 記載の光学要素。

1 4 . 前記有機ガラス基材が、①ポリオール、ポリチオール、及び、メルカプト基を有するヒドロキシ化合物の群から選択される 1 種又は 2 種以上の活性水素化合物と、②ポリイソチオシアネート化合物又はイソシアネート基を有するイソチオシアネート化合物の
20 群から選択される 1 種又は 2 種以上とを重合反応させて得られるもの、又は、

一般式④



25

(ただし、X は S または O を表し、この S の個数は三員環を構成

する S と O の合計に対して平均で 50 % 以上である。)

で示される構造を 2 個以上有し環状骨格を有するエピスルフィド化合物を重合反応させて得られるものであることを特徴とする請求項 12 又は 13 記載の光学要素。

5 15. 前記ハードコート層の上に、更に、無機物質系の反射防止膜層を積層させたことを特徴とする請求項 12 記載の光学要素。

16. 前記反射防止膜が設計中心波長 λ を 450 ~ 550 nm とし、前記ハードコート層側から、光学膜厚 0.19 ~ 0.29 λ の中屈折率層、光学膜厚 0.42 ~ 0.58 λ の高屈折率層、光学
10 膜厚 0.19 ~ 0.29 λ の低屈折率層の順に成膜させた多層構造を有することを特徴とする請求項 15 記載の光学要素。

17. 前記中屈折率層と、前記高屈折率層がそれぞれ屈折率の異なる物質を 2 層以上用いた等価膜からなることを特徴とする請求項 16 記載の光学要素。

15 18. 請求項 15、16 又は 17 記載の反射防止膜の成膜前に、ハードコート層表面をイオンクリーニング処理することを特徴とする反射防止膜の成膜方法。

19. 前記反射防止膜のうち、少なくとも高屈折率層の成膜をイオンビームアシスト法による蒸着で行うことを特徴とする請求項
20 18 記載の反射防止膜の成膜方法。

20. 有機ガラス基材又はハードコート層を備えた有機ガラス基材（以下「被染基材」という。）を昇華型染色する際に使用する染色用組成物において、

25 サイズ剤をアクリル系樹脂とし、染料を非水溶性染料とし、染料溶解剤を S P 値（溶解性パラメーター）8 ~ 11 の有機溶媒とすることを特徴とする染色用組成物。

21. 前記アクリル系樹脂と前記非イオン性染料との重量配合比が前者／後者＝60／40～5／95であることを特徴とする請求項20記載の染色用組成物。

22. 請求項20又は21記載の染色用組成物を用いて被染基
5 材を着色する方法において、

前記染色用組成物を被染基材上に塗布して付着膜を形成後、前記非イオン性染料を昇華させることにより、前記被染基材内に移染を行なうことを特徴とする有機ガラスの染色方法。

23. 前記非イオン性染料の昇華を、100～200℃の加熱
10 処理により行なうことを特徴とする請求項22記載の有機ガラスの着色方法。

24. 有機ガラス基材の表面に、プライマー層を介してハードコート層が形成されてなり、更に有機ガラス基材が昇華型染色されてなる光学要素において、

15 プライマー層を形成するプライマー組成物が、プライマー層形成ポリマーの全部又は主体をエステル系TPEとするものであり；
エステル系TPEであり；

前記ハードコート層を形成するハードコート組成物が、

モノエポキシ有機基含有トリアルコキシシランを主体とするアル
20 コキシシランの加水分解物をマトリックス形成成分として、チタニア系酸化金属複合微粒子を光学的干渉制御剤とし、

前記チタニア系酸化金属複合微粒子が、 TiO_2 を主体とし SiO_2 を主副成分とし、更に、 ZrO_2 及び K_2O を微量副成分とするものであり；さらに、

25 前記昇華型染色に使用された染色用組成物が、サイズ剤をアクリル系樹脂とし、染料を非水溶性染料とし、染料溶解剤をSP値（溶

解性パラメーター) 8～11の有機溶媒とするものである、
ことを特徴とする光学要素。

25. 前記プライマー組成物が、さらに金属酸化物微粒子を光学的干渉制御剤として含有するものであることを特徴とする請求項2
5 4記載の光学要素。

26. 前記有機ガラス基材が、①ポリオール、ポリチオール、及び、メルカプト基を有するヒドロキシ化合物の群から選択される1種又は2種以上の活性水素化合物と、②ポリイソチオシアネート化合物又はイソシアネート基を有するイソチオシアネート化合物の群
10 から選択される1種又は2種以上とを重合反応させて得られるもの、又は、

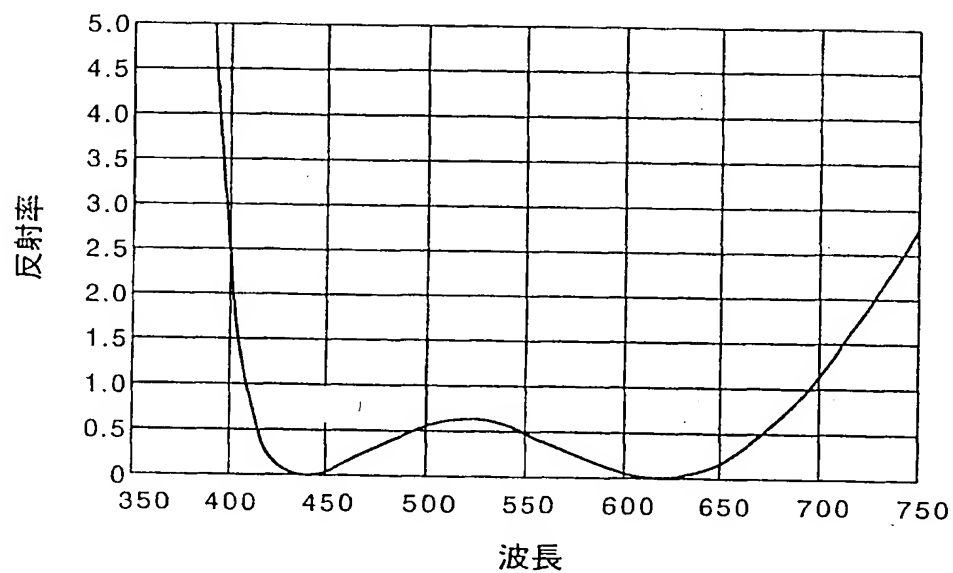
一般式④



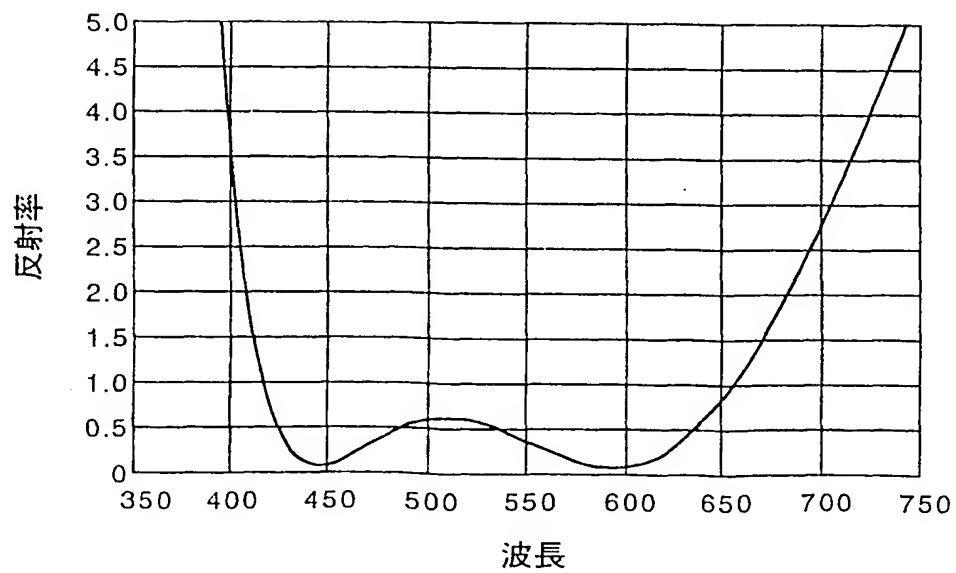
(ただし、XはSまたはOを表し、このSの個数は三員環を構成するSとOの合計に対して平均で50%以上である。)

で示される構造を2個以上有し環状骨格を有するエピスルフィド化合物を重合反応させて得られるものであることを特徴とする請求
20 項24又は25記載の光学要素。

第 1 図



第 2 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03180

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C09D167/00, C09D5/00, C09D183/06, C08J7/04, C08G18/32, C08G75/02,
G02B1/10, G02B1/04, D06P5/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C09D167/00, C09D5/00, C09D183/06, C08J7/04, C08G18/32, C08G75/02,
G02B1/10, G02B1/04, D06P5/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI

PATOLIS

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
EX	JP 2000-144048 A (Ito Kogaku Kogyo K.K.), 26 May, 2000 (26.05.00), Claims 1 to 10 (Family: none)	1-6, 8-15
X	JP 3022555 B (Hoya Corporation), 14 January, 2000 (14.01.00), Claims 1, 9; Par. No. 12; example (Family: none)	20-23
A	JP 6-11601 A (Nikon Corporation), 21 January, 1994 (21.01.94) (Family: none)	1-26
A	JP 10-123301 A (Nikon Corporation), 15 May, 1998 (15.05.98) (Family: none)	1-26
A	JP 11-174205 A (Seiko Epson Corporation), 02 July, 1999 (02.07.99) (Family: none)	1-26
A	JP 11-193355 A (Ito Kogaku Kogyo K.K.), 21 July, 1999 (21.07.99) (Family: none)	1-26

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
28 July, 2000 (28.07.00)

Date of mailing of the international search report
08 August, 2000 (08.08.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03180

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 6-337379 A (Nikon Corporation), 06 December, 1994 (06.12.94), Par. No. 19 (Family: none)	1-26
A	JP 9-176520 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 08 July, 1997 (08.07.97) (Family: none)	1-4

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03180

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

A matter common to claims 1 to 19 and claims 24 to 26 is to use a primer layer comprising a thermoplastic polyester elastomer.

However, claims 20 to 23 disclose a composition for dyeing a base not having the primer layer.

Consequently, there is no matter common to all the claims. Since there is no common matter which is regarded as a special technical matter in the sense of the second sentence in Rule 13.2 of the Regulations under the PCT, no technical relationship in the sense of Rule 13 of the Regulations under the PCT can be found between these different groups of inventions.

Therefore, it is obvious that claims 1 to 26 do not comply with the requirement of unity of invention.

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷. C09D167/00, C09D5/00, C09D183/06, C08J7/04, C08G18/32, C08G75/02, G02B1/10, G02B1/04, D06P5/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷. C09D167/00, C09D5/00, C09D183/06, C08J7/04, C08G18/32, C08G75/02, G02B1/10, G02B1/04, D06P5/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

PATOLIS

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
EX EA	JP, 2000-144048, A (伊藤光学工業株式会社) 26. 5月. 2000 (26. 05. 00), 請求項1~10 (ファミリーなし)	1-6, 8-15 7, 16-19, 24-26
X	JP, 3022555, B (ホーヤ株式会社) 14. 1月. 2000 (14. 01. 00) 請求項1, 9, 第12段落, 実施例 (ファミリーなし)	20-23

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

28. 07. 00

国際調査報告の発送日

08.08.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

井上 千弥子

4V

2935

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 6-11601, A(株式会社ニコン) 21. 1月. 1994(21. 01. 94), 請求項1~3, 第17, 20, 26, 37, 51, 61, 70段落 (ファミリーなし)	1-26
A	JP, 10-123301, A(株式会社ニコン) 15. 5月. 1998(15. 05. 98), 請求項1~15 (ファミリーなし)	1-26
A	JP, 11-174205, A(セイコーエプソン株式会社) 2. 7月. 1999(02. 07. 99), 請求項1~6, 第9段落 (ファミリーなし)	1-26
A	JP, 11-193355, A(伊藤光学工業株式会社) 21. 7月. 1999(21. 07. 99), 請求項1~8, 実施例 (ファミリーなし)	1-26
A	JP, 6-337379, A(株式会社ニコン) 6. 12月. 1994(06. 12. 94), 第19段落 (ファミリーなし)	1-26
A	JP, 9-176520, A(日本ゼオン株式会社) 8. 7月. 1997(08. 07. 97), 請求項1~4 (ファミリーなし)	1-4

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1～19、24～26に共通の事項は、ポリエステル系熱可塑性エラストマーよりなるプライマー層を用いることである。

しかしながら、請求の範囲20～23では、前記プライマー層より構成されない基材の染色用組成物が記載されている。

したがって、請求の範囲の全てに共通の事項はなく、PCT規則13.2の第2文の意味において特別な技術的事項と考えられる他の共通の事項は存在しないので、それらの相違する発明の間にPCT規則13の意味における技術的な連関を見出すことはできない。

よって、請求の範囲1～26は発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

